



Excitation et ionisation des atomes d'hydrogène et d'hélium par des impulsions laser femtosecondes : approche théorique par des états de "Coulomb-Volkov"

Roland Guichard

► To cite this version:

Roland Guichard. Excitation et ionisation des atomes d'hydrogène et d'hélium par des impulsions laser femtosecondes : approche théorique par des états de "Coulomb-Volkov". Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2007. Français. NNT: . tel-00244653

HAL Id: tel-00244653

<https://theses.hal.science/tel-00244653>

Submitted on 7 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 3522

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE
L'INGÉNIEUR

par M. Roland GUICHARD

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPECIALITÉ : NOYAUX, ATOMES, AGRÉGATS, PLASMAS

Sujet : Excitation et ionisation des atomes d'hydrogène et d'hélium par des
impulsions laser femtosecondes : approche théorique
par des états de « Coulomb-Volkov »

Soutenue le 12 décembre 2007

Après avis de

MM. B. Piraux, Professeur
J. Hanssen, Professeur

Rapporteur
Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de

MM. J.C. Rayez, Professeur
B. Piraux, Professeur
J. Hanssen, Professeur
H. Bachau, Directeur de recherche CNRS
R. Taïeb, Chargé de recherche CNRS

Président

Directeur de thèse
Rapporteur de soutenance

Membre invité : M. R. Gayet

Excitation et ionisation des atomes
d'hydrogène et d'hélium par des impulsions
laser brèves et intenses: approche théorique
par des états de « Coulomb-Volkov »

Roland Guichard

7 février 2008

Remerciements

La Physique...Univers passionnant s'il en est, monde magique, éblouissant, merveilleux où les photons, solitons, barytons et tous ces mots en « -on » interagissent dans un gigantesque bouillonnement, à des vitesses souvent proches de la lumière. Leur évocation en soirée mondaine fait briller le physicien aux yeux de la société qui le côtoie...Enfin presque...Chacun n'a t'il jamais eu l'occasion, lors de ces fameuses soirées, de rencontrer un(e) charmant(e) jeune personne, et lors de la question fatidique

-Mais au fait, tu fais quoi dans la vraie vie toi ?

Généralement, il s'ensuit un léger instant de flottement de l'ordre de plusieurs millisecondes voire secondes...

-Hummm...je suis en thèse de heuuu...physique...

-Thèse de quoi ?

-Heu, de physique...

A ce temps t , plusieurs réponses sont possibles :

-Réponse 1. Ah, la physique, qu'est ce que j'ai pu me faire chier avec ces histoires de ressorts...

Bien, ça annonce une soirée passionnante. Autre cas, il se peut qu'après un silence d'une durée approximative de Δt

-Réponse 2. Tiens, mon verre est vide...

Et tel un pestiféré, personne ne vous adresse plus la parole. Ou alors, cas plus rare mais néanmoins probable

-Réponse 3. Ah ouais, tu travailles donc pour fabriquer des bombes ???

Parfait, comment sortir de l'amalgame en moins de dix minutes ? J'ajouterais que le sacerdoce ne s'arrête pas là. Décrire votre travail de physicien à une communauté qui n'y connaît parfois pas grand chose à votre domaine n'est rien en comparaison du « expliquer-sa-thèse-de-physique-théorique-à-sa-grand-mère ». Je me suis donc drapé dans ma fièreté quand je me suis rendu compte que nous sommes des incompris d'une société ingrate. Cepen-

dant, les hommes et les femmes que nous sommes ont choisi de servir la science et c'est leur joie (disciplus simplex) pour l'abnégation, la beauté, l'éthique et l'amour du risque tels des justiciers (pas) milliardaires...Donc pour rendre hommage à tous ces martyrs dévoués, cette masse laborieuse et magnifique je tiens à remercier tout particulièrement Robert Gayet (ÔÔôô maître....) l'initiateur, le guide, que dis-je ? L'âme absolue de l'interaction laser-atome de tout l'Ouest de Bordeaux 1...Celui par qui (son pas fait trembler les montagnes...) toute cette aventure a commencé. Mais également Henri Bachau (son nom soit mille fois loué...) dont le très grand mérite fût de reprendre et de continuer avec ardeur et précision ce travail. Plus généralement, j'adresse mes plus sincères remerciements à Eric Cormier (sa voix résonne dans les mémoires...) pour m'avoir enseigné les arcanes secrètes de son code ESDT, Sophie Jequier (son rire enflamme les couloirs...), Bernard Pons (les taxis madrilènes se souviennent de ses appels ainsi que les femmes de chambre des hôtels allemands de ses billets...), Hervé Jouin pour ses nombreux conseils, Elodie Parzy et Jean-Michel Franconi pour le monitorat. Je voudrais aussi adresser les hommages aux membres de mon jury, et tout particulièrement aux rapporteurs Bernard Piraux et Jocelyn Hanssen. Je suis au moins sûr que deux personnes sur Terre auront lu ma thèse, avant qu'elle ne finisse au fond d'une bibliothèque poussiéreuse. Plus généralement tous ceux du CELIA qui ont contribué un peu, beaucoup, passionnément, à la folie à l'ambiance excellente du laboratoire. Ceci ne serait évidemment pas complet sans y ajouter ceux qui m'ont supporté de près et/ou de loin, au tout premier chef Roland le coburaliste mateux, Emilien l'homme des couloirs et le fantôme Aubin, le gros Nono, Benoît, Afeintou, Stéphane le batteur compulsif, Jérôme le sumo, Philippe, Jean-Luc, Xavier, Anne et Virginie et ses gatôôôô, pour la bande du couloir B (Couloir B for eveuuuuuuurrrr!!!!). Une pensée particulière pour les autres, Didier, Fred, Claudius et Olivier-le-capœiriste-en-herbe et tous ceux d'Arte Negra : Marcelo, Mandinga, Giagia, Negiinho, De mel, Brankiinha, Vara, Dadiinho, Del et Thibault, la capœira ça vous gagne (ah non ça c'est la montagne...). Spécial dédikass du 3-3 Saint-Mich à mes potosses à moi, Dodz, Toufe, Moon, les Veiga-Hostein Gino, Jocko et Samichmuche ainsi que Julio, Trudinet et leurs petits respectifs Emma, Raphaël mais aussi Fredouze le tibeliaï...Et bien sûr Nadège, Manu-Manu, Tiastounet et Aûdê...Wouala pour la clique...

Il est nécessaire de consacrer ce dernier paragraphe à ceux qui me sont proches et à qui vont mes plus sincères et profonds remerciements. Je pense bien sûr à mes parents dont je suis fier d'être sur les traces, et pour qui la tâche n'a pas dû être toujours facile ainsi que mes grands-parents. Enfin, l'ultime remerciement va à Mamilou (Maaaaaammmilouuuuuu...sur un air de Goodbye Marylou) pour le partage de sa vie...ch'tite moumou...

A mes grands-parents,
A mes parents,
A Mamilou
Et au lecteur courageux

Sigles, symboles et commentaires

Sigles

ADK	Ammosov-Delone-Krainov
BSI	Barrier suppression ionization
BSP	Born en série de perturbation
CCC	Convergent close coupling
COLTRIMS	Cold-target recoil-ion momentum spectroscopy
CPA	Chirped pulse amplification
CV	Coulomb-Volkov
DPI	Double photoionisation
DPI ω	Double photoionisation à un photon
DPI2 ω	Double photoionisation à deux photons
ECR	Equations couplées réduites
ECS	Exterior complex scaling
ELS	Equations de Lippman-Schwinger
ESDT	Equation de Schrödinger dépendante du temps
IR	Infrarouge
KFR	Keldysh-Faisal-Reiss
LEL	Laser à électrons libres
MCV	Modified Coulomb-Volkov
RCV	Renormalized Coulomb-Volkov
SAE	Single active electron
SETD	Section efficace triplement dérivée
SFA	Strong field approximation
SPIDER	Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction
UV	Ultraviolet
2SC	Two screened Coulomb wavefunctions
3C	Three Coulomb wavefunctions
eV	Electron-volt
<i>u.a.</i>	Unités atomiques

Symboles

\mathcal{O}	Majuscule curviligne : opérateur
ε	Energie de l'état atomique
\mathcal{V}	Etat de Volkov
Ψ	Fonction d'onde exacte de l'état à chaque instant t
Φ	Fonction d'onde exacte non perturbée de l'état à chaque instant t
χ	Fonction d'onde approchée de l'état à chaque instant t
φ	Partie spatiale (radiale et angulaire) de la fonction d'onde
R_{nl}	Partie radiale de la fonction d'onde
\mathcal{Y}_ℓ^m	Harmonique sphérique
$\mathcal{C}_{\vec{k}}$	Fonction d'onde Coulombienne
$\psi_{\vec{k}}$	Partie spatiale de la fonction d'onde Coulombienne
Ω	Angle solide
(ϕ, θ)	Coordonnées sphériques azimutale et colatitudinale

Nota Bene :

De nombreux quiproquos sont soulevés par l'utilisation des termes « intensité » ou « éclairement » pour qualifier le rayonnement d'une source laser interagissant avec un système atomique. Cette note a pour but de clarifier ce détail et d'exposer le point de vue adopté dans ce manuscrit. En suivant la définition de l'optique photométrique, l'intensité d'une source ponctuelle est le flux Φ rayonné par unité d'angle solide Ω dans une direction considérée.

$$I = \frac{d\Phi}{d\Omega} \quad \text{unité} \quad [W.sr^{-1}] \quad (1)$$

L'éclairement d'un récepteur quant à lui, définit le flux lumineux reçu par unité de surface S' .

$$E = \frac{d\Phi}{dS'} \quad \text{unité} \quad [W.m^{-2}] \quad (2)$$

Ces deux quantités sont donc différentes sur deux points : d'un côté il y a la notion de source et d'angle solide, de l'autre de récepteur et de surface. Nous allons considérer ici que le faisceau laser incident ne peut pas, au vu des dimensions atomiques des systèmes étudiés, être considéré comme ponctuel. Dans ce cas, si la source représente une surface de grandes dimensions, l'intensité ne peut plus être définie par unité d'angle solide mais doit l'être

par unité de surface ($d\Omega = dS$). De plus, si l'on considère une propagation rectiligne uniforme de ce faisceau, la surface réceptrice sera identique à celle émettrice ($dS' = dS$). Il s'agira en définitive d'un « cylindre de lumière » où l'intensité et l'éclairement seront traités sur un pied d'égalité. Nous considérerons donc qu'il s'agit exactement de la même quantité et nous choisissons pour le reste du manuscrit le terme d'intensité.

Table des matières

Introduction générale	17
 I Théorie Coulomb-Volkov et dynamique de l'atome d'hydrogène en interaction avec des impulsions laser intenses et brèves	 23
Introduction	25
 1 L'interaction laser-atome en champ intense et bref	 29
1.1 Introduction	29
1.2 Processus multiphotoniques dans les atomes	30
1.2.1 Ionisation multiphotonique et « Above Threshold Ionisation » (ATI)	30
1.2.2 La génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE) . .	33
1.2.3 Les collisions électrons-atomes assistées par laser	36
1.3 Etat de l'art théorique	37
1.3.1 Traitement global	38
1.3.2 Traitement approché	42
1.4 Cadre et positionnement de notre travail	52
1.4.1 Structure atomique, Hamiltonien et approximations . .	52
1.4.2 Les différentes jauges	55
1.4.3 Le modèle semi-classique de l'impulsion laser	57
1.4.4 Positionnement de notre travail	59
1.5 Conclusion	62
 2 L'approche Coulomb-Volkov	 63
2.1 Introduction	63
2.2 Formalisme des amplitudes de transition CV2	64

2.3	Les états de Coulomb-Volkov	66
2.3.1	L'analogie collision ionique-collision photonique	66
2.3.2	Les états de Volkov	67
2.3.3	Les états de Coulomb-Volkov	67
2.3.4	Suppression des termes de décalage dans les approches Coulomb-Volkov	69
2.3.5	Développement dans la jauge des vitesses	69
2.4	Application à l'excitation multiphotonique de l'hydrogène . . .	70
2.4.1	Amplitude de transition appliquée aux transitions entre états liés de l'hydrogène	71
2.4.2	Le développement multiphotonique	73
2.5	Application à l'hélium	74
2.5.1	Systèmes de coordonnées	75
2.5.2	Fonction d'onde initiale	76
2.5.3	Fonction d'onde finale	76
2.5.4	Amplitude de transition appliquée à l'ionisation double de l'hélium	78
2.6	Conclusion	83
3	Dynamique de l'hydrogène atomique	85
3.1	Introduction	85
3.2	Vers les champs intenses UV et X	86
3.2.1	Les équations couplées réduites	86
3.2.2	Application à l'ionisation d'un cristal présentant un dé- faut de structure	89
3.3	Vers les petites énergies de photon	91
3.3.1	Probabilité d'excitation multiphotonique de $H(1s)$ vers $H(2p)$ ou $H(2s)$	92
3.3.2	Résultats	95
3.3.3	Effet de l'enveloppe sur l'excitation	97
3.4	Comparaison des développements Born et CV2 en séries de perturbation	102
3.4.1	Développement de Born en série de perturbation	102
3.4.2	Développement CV2 en série de perturbation	103
3.5	Conclusion	104
	Conclusion	107

II Dynamique de l'hélium en interaction avec des impulsions laser brèves et intenses 109

Introduction 111

4 La double photoionisation de l'hélium à un et deux photons 117

- 4.1 Introduction 117
- 4.2 Les mécanismes de la DPI 117
 - 4.2.1 La double photoionisation à un photon : $\text{DPI}\omega$ 118
 - 4.2.2 La double photoionisation à deux photons : $\text{DPI}2\omega$ 121
- 4.3 Le développement de base de la DPI : la densité de probabilité $\mathcal{D}_{(1s)^2}$ 124
 - 4.3.1 Double ionisation à un photon 127
 - 4.3.2 Double ionisation à deux photons 134
 - 4.3.3 Conclusion 137

5 Les rôle des corrélations électroniques dans l'état final 141

- 5.1 Introduction 141
- 5.2 Le modèle à charges variables 141
 - 5.2.1 Double ionisation à un photon : la section efficace 142
 - 5.2.2 Double ionisation à deux photons : la section efficace 142
 - 5.2.3 Conclusion 143
- 5.3 Les corrélations électroniques : le modèle des charges écrantées 2SC 144
 - 5.3.1 Double Ionisation à un photon 146
 - 5.3.2 Double ionisation à deux photons 150
 - 5.3.3 Conclusion 151
- 5.4 Les corrélations électroniques : le modèle 3C 153
 - 5.4.1 Double ionisation à un photon 155
 - 5.4.2 Double ionisation à deux photons 158
 - 5.4.3 Discussion et conclusion 162

6 Le rôle des corrélations électroniques dans l'état initial 165

- 6.1 Introduction 165
- 6.2 Le formalisme 165
 - 6.2.1 Fonction d'onde initiale 166
 - 6.2.2 Amplitude de transition 166
- 6.3 Double ionisation sans corrélations dans l'état final 168
 - 6.3.1 Double ionisation à un photon 168
 - 6.3.2 Double ionisation à deux photons 172
- 6.4 Double ionisation avec corrélations 3C dans l'état final 175

6.4.1	Double ionisation à un photon	175
6.4.2	Applications de la théorie CV2 à un photon	179
6.4.3	Double ionisation à deux photons	184
6.4.4	Applications de la théorie CV2 à deux photons	188
6.5	Perspectives et conclusion	190
7	Le rôle des états intermédiaires dans la DPI2ω	193
7.1	Introduction	193
7.2	Formalisme général	193
7.3	Born II sans états intermédiaires	194
7.4	Born II avec état intermédiaire	197
7.4.1	Section efficace	199
7.5	Born II avec état intermédiaire et fondamental amélioré	203
7.6	Conclusion	206
	Conclusion	207
	Conclusion et perspectives	211
	Table des figures	224
	Références	241
	Annexes	245
A	Le système d'unités atomiques	245
B	La normalisation du double continuum, le facteur N	247
C	L'intégrale $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ et ses limites	251
C.1	Calcul de l'intégrale $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$	251
C.2	Limite de $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ en $k = 0$	253
D	L'intégrale $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ et ses limites	261
D.1	Calcul de l'intégrale $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$	261
D.2	Limite de $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ en $k = 0$	265
D.3	Limite de $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ quand $\vec{A}(t) \rightarrow 0 : \tilde{K}_{\vec{k}}(t)$	271

E	Born et CV2 en série de perturbation	273
F	La section efficace totale d'interaction photon-atome	277
G	Amplitude de transition avec état fondamental amélioré	283
H	Intégrales sur t du développement Born II	311
H.1	Born II sans état intermédiaire	311
H.2	Born II avec état intermédiaire	319
I	Développements Born II	325
I.1	Born II avec état intermédiaire	325
I.2	Born II avec état intermédiaire et état fondamental amélioré .	330

Introduction générale

DÈS que les propriétés de la lumière ont pu être parfaitement contrôlées, elle est devenue l'un des outils privilégiés de l'étude de la dynamique électronique au sein des atomes. De plus, grâce à leurs caractéristiques de monochromaticité, cohérence et polarisation, l'utilisation d'impulsions laser s'est largement étendue : des applications médicales connues, à la course aux lasers de puissance, en passant par une utilisation commerciale de masse, le laser a aujourd'hui investi tous les domaines de la société. C'est l'un des exemples les plus célèbres de technologie dont les avancées en termes d'intensité et de durée d'impulsion, ouvrent de nouvelles perspectives de recherche. Ainsi, quand les grandeurs de la dynamique électronique dans les atomes se voient sondées à leur propres échelles, des informations claires et précises sont accessibles. Cette dynamique induite par des impulsions laser dans le domaine infrarouge (IR), est maintenant bien connue et dominée par deux aspects : d'une part, le grand nombre de photons mis en jeu, et d'autre part la faible largeur spectrale du rayonnement incident. La durée de ce type d'impulsions étant suffisamment longue pour négliger celle-ci. Nous sommes actuellement dans une phase de transition où plusieurs protocoles expérimentaux génèrent un rayonnement laser impulsif ultraviolet (UV) intense et bref. Dès lors, les phénomènes induits n'ont plus du tout les mêmes caractéristiques ; nous nous déplaçons vers une dynamique dominée par un faible nombre de photons et où désormais la largeur spectrale du rayonnement viendra jouer un rôle déterminant. De nouvelles installations voient le jour, en particulier le laser à électrons libres (LEL), modèle hybride entre une source laser traditionnelle et un rayonnement synchrotron [1]. Le principe de base consiste à remplacer le milieu amplificateur par un faisceau d'électrons relativistes dont l'énergie est partiellement convertie en rayonnement électromagnétique. Le LEL s'écarte donc des lasers conventionnels car pour ces derniers, c'est la nature discrète des niveaux d'énergie du milieu qui impose les longueurs d'onde du rayonnement émis. Pour le LEL au contraire, on a affaire à un quasi-continuum de niveaux électroniques. Des électrons sont issus d'un accélérateur puis injectés dans une structure appelée onduleur dont le but est de courber périodiquement leur trajectoire afin qu'ils acquièrent une vitesse transverse sinusoïdale. Une émission à une longueur d'onde particulière de résonance apparaît : c'est un rayonnement laser. Celui-ci est ensuite amplifié par une cavité optique puis extrait. L'avantage majeur de ce genre de dispositif est l'accordabilité de la longueur d'onde en fonction du paramètre de déflexion de l'onduleur, mais également les fortes intensités que l'on peut obtenir en fonction du courant d'électrons incidents. A titre d'exemple les performances que l'on atteint actuellement sont de l'ordre de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ avec des durées d'impulsion de 20-100 fs et des photons de plusieurs dizaines d'eV sur la source FLASH de Hambourg. En 2002, une expérience réalisée sur un agrégat de xénon avec

une source LEL de forte intensité ($7.10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) et d'énergie de photon de $12,7 \text{ eV}$ fait apparaître des effets spectaculaires très différents de ceux observés à l'aide d'énergie de photons dans le domaine visible. Tout d'abord, l'ionisation simple de certains atomes de xénon se fait par absorption d'un photon menant ensuite à la formation d'un plasma. Ce dernier induit une forte augmentation de l'absorption de photons conduisant finalement à l'explosion Coulombienne de l'agrégat [2]. Plus récemment, on a pu observer la double ionisation par absorption de deux photons dans l'hélium [3], sur la source FLASH, et la réponse non-linéaire de cet atome lorsqu'il est soumis à une radiation intense dans l'UV lointain [4]. Dans un avenir proche, il est prévu de produire des photons d'une centaine d'eV à des intensités allant bien au-delà de $10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$.

Ceci ouvre de nouveaux champs d'investigation, aussi bien du côté expérimental que théorique. Il faudra en particulier développer des méthodes théoriques adaptées au contexte de ces champs très intenses dans le domaine XUV et c'est précisément dans cette perspective de moyen terme que se situe notre travail. D'un autre côté, l'essor et l'emploi des lasers impulsionsnels tel le Titane-Saphir comme une source IR intense et brève a permis, avec le progrès des optiques, la production d'un rayonnement secondaire composé d'un train d'harmoniques élevées et intenses [5]. Des processus non-linéaires induits par ce type de rayonnement ont été observés, par exemple la double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons de $41,8 \text{ eV}$ (27ème harmonique du Titane-Saphir) à une intensité de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ [6]. La génération d'harmoniques ouvre également la voie à la production d'impulsions attosecondes uniques, en isolant une seule impulsion de ce train [7, 8]. Si ces impulsions ultra-brèves offrent la possibilité d'explorer la matière à des échelles de temps « atomiques », l'activité dans ce domaine est concentrée sur la métrologie avec le développement de diverses méthodes de mesure de la durée de ces impulsions (par exemple la méthode SPIDER « Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction » initialement développée par C. Iaconis et I. Walmsley [9]). Parallèlement au développement de ces diagnostics, il faut noter les progrès réalisés dans la détection. Une technique d'imagerie et de mesure performante de la fragmentation complète de petits systèmes, le COLTRIMS (« Cold-Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy ») est désormais utilisée [10]. Tous les fragments chargés d'un atome, d'une molécule où les produits d'une réaction de surface sont projetés par une combinaison de champs électriques et magnétiques sur une surface sensible. D'après la mesure du temps de vol des particules et leur position d'impact sur le détecteur, il est possible d'obtenir leur vecteur d'onde en trois dimensions avec une résolution de l'ordre de $0,05$ unités atomiques (*u.a.*). Ainsi, nous voyons que tous les éléments sont en place pour l'étude fine des phénomènes électro-

niques dans les atomes : production de rayonnements énergétiques, intenses et brefs, techniques de diagnostic et de détection efficaces.

Jusqu'à présent, un grand nombre de théories ont vu le jour dans le contexte des lasers IR intenses. Des approches « *ab-initio* » comme la résolution directe de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT) par diverses méthodes numériques, ont été développées ; cependant, lorsque le régime d'ionisation passe de l'absorption multiphotonique au régime tunnel, cette méthode devient très lourde. De plus, le traitement des systèmes complexes par l'ESDT est aussi difficile. D'autres approches, exploitant la forte interaction avec le champ laser comparée à l'effet de la charge atomique (SFA pour « *Strong Field Approximation* »), ont également été mises en place (voir [11] pour une revue récente de la méthode SFA). Une attention particulière a été donnée à l'ionisation et L.V. Keldysh a effectué un travail de pionnier dans ce domaine, sur la base des travaux de D.M. Volkov [12], en établissant une approche qui s'applique en régimes tunnel et multiphotonique [13]. Il a défini un paramètre les délimitant : le « *paramètre de Keldysh* » dépendant de la fréquence laser, de l'intensité et du potentiel d'ionisation. Par la suite, ce modèle a été amélioré avec la théorie Keldysh-Faisal-Reiss (KFR) [13, 14, 15]. D'autres approches en « *champs forts* », fondées sur l'étude de l'ionisation en champ statique, ont été développées. La plus populaire est certainement la méthode d'Ammosov-Delone-Krainov (ADK) [16] dont les limites ont récemment été discutées [17]. La méthode KFR a fait l'objet de nombreuses études dans le cadre des champs lasers IR intenses [18] mais ne donne pas de résultats satisfaisants pour l'ionisation des atomes, car l'effet de la charge nucléaire est négligé (voir la revue [18], chapitre 4). D'un point de vue général, le potentiel Coulombien joue un rôle important dans l'ionisation des électrons de basse énergie, et ce point constitue une limitation importante de la méthode SFA [19]. S'il est clair que les approches basées sur cette approximation sont moins performantes que les traitements de type ESDT, elles ont dans beaucoup de cas amené une compréhension plus approfondie des processus physiques impliqués dans l'interaction laser-matière. En revanche, le domaine XUV a été bien moins étudié par les méthodes de ce genre, puisque les intensités disponibles jusqu'à la fin du siècle dernier ne permettaient pas d'explorer le régime d'ionisation ou d'excitation non-linéaire. C'est ce qui a motivé l'étude de l'approche « *Coulomb-Volkov* » [20] dans le laboratoire. Comme nous le verrons par la suite, c'est une approche de type SFA qui prend en partie en compte l'effet de la charge nucléaire. Dans des publications précédentes [21, 22, 23] l'efficacité d'une telle méthode a été démontrée, reposant sur l'emploi d'états particuliers dits de « *Coulomb-Volkov* » dans ce cadre de l'ionisation d'atomes par des impulsions UV femtosecondes. Ces états se scindent en deux facteurs distincts, représentant d'une part l'inter-

action noyau atomique-électron et d'autre part l'interaction électron-champ électromagnétique extérieur. Ses avantages résident dans sa capacité à décrire les transitions multiphotoniques sans recourir à un développement en série, mais également dans la description du caractère Coulombien du dipôle atomique. L'idée générale de ce travail est d'utiliser l'approche « Coulomb-Volkov » pour la description de l'ionisation d'atomes en champ XUV et en régime non-linéaire. Certaines limitations établies lors de ces précédents travaux, seront analysées sur la base de l'étude de l'hydrogène atomique en champ laser XUV intense. Dans un cadre plus prospectif, nous aborderons aussi le problème de l'ionisation double de l'hélium en champ XUV intense, tout d'abord par l'absorption d'un photon, afin de comparer avec les nombreux travaux publiés. Nous verrons également comment aborder le problème très actuel de la double ionisation directe à deux photons. Nous évaluerons dans ce contexte l'effet des corrélations électroniques et celui des approximations propres à l'approche Coulomb-Volkov. Tout au long de ce travail, nous nous placerons dans des conditions d'intensité et de durée d'impulsion telles que l'ionisation soit dominée par l'absorption de photons : c'est le régime « multiphotonique ». Deux raisons justifient ce choix : le développement d'une description de base s'en trouve facilitée et de nombreux résultats théoriques mais surtout expérimentaux ont été obtenus dans ces conditions. En effet, les intensités laser disponibles alors ne permettaient pas d'étudier l'ionisation en champ très intense. Ces résultats vont donc nous servir de base de comparaison. Ainsi on n'abordera pas le régime d'ionisation à plus haute intensité, où l'on change de régime d'ionisation. Dans cette situation, le champ est suffisamment fort pour abaisser la barrière de potentiel retenant l'électron, lequel peut s'échapper de la structure atomique par effet tunnel. L'étude de l'ionisation dans ce régime « tunnel » constitue le prolongement naturel de notre travail à plus long terme.

Ce document est découpé en deux parties. La première partie expose globalement les processus d'interaction qui nous concernent, ainsi que le cadre, les développements théoriques et l'application concrète de notre approche à l'hydrogène. Elle est donc divisée en trois chapitres dont le premier traite du détail de l'interaction laser-matière à l'échelle atomique. Nous y décrivons quels sont les processus qui nous intéressent particulièrement, ainsi que ceux qui se rapportent à des thématiques développées au laboratoire CELIA. Nous y ferons un état de l'art théorique afin de cerner les spécificités des traitements déjà existants. Enfin, nous présenterons plus formellement le contexte de notre méthode. Le deuxième chapitre concerne directement le développement analytique des amplitudes de transition, base fondamentale de notre approche. Y sont regroupés les détails techniques des calculs que nous allons ensuite utiliser pour l'étude de l'irradiation de l'hydrogène et de

l'hélium, ainsi que des considérations propres à la méthode. Dans le troisième chapitre, l'un des développements précédents est appliqué à deux cas : d'un côté l'ionisation de l'hydrogène en conditions de champ intense, et de l'autre l'excitation avec des énergies de photon inférieures à la moitié du potentiel d'ionisation. Dans le premier cas, nous aurons recours à un calcul annexe de la population de l'état fondamental pour pouvoir exporter la description au-delà des conditions de perturbation. Dans le second, nous regarderons précisément les transitions multiphotoniques intervenant entre états liés de l'hydrogène. Enfin, nous démontrerons pourquoi l'emploi de ce genre de méthode n'inclut pas la contribution des états intermédiaires et comment remédier simplement à cette limitation. La deuxième partie est dévolue plus spécifiquement à l'étude de l'hélium en interaction avec une impulsion laser brève et intense : elle est divisée en quatre chapitres. Dans le premier chapitre nous regarderons les deux cas précis de la double ionisation à un et deux photons avec un développement de base. Travailler sur un processus multiélectronique requiert une modélisation des interactions électron-électrons intervenant lors de l'ionisation double par une impulsion laser. Ce point constituera le second chapitre de cette partie. Nous regarderons en particulier quel sera l'impact des différents types de corrélations électroniques¹ (radiales ou angulaires) sur les quantités calculées. Dans un troisième temps, il s'agira de regarder quelle peut être l'influence du degré d'approximation de l'état fondamental, par la prise en compte d'un plus grand nombre d'orbitales atomiques de base. Ceci dans l'objectif d'étendre la description hors conditions d'équipartition de l'excès d'énergie apportée par les photons de l'impulsion. Enfin, dans le dernier chapitre, nous développerons un traitement fondé sur l'approximation de Born au deuxième ordre incluant explicitement les états intermédiaires. Nous regarderons donc comment la dynamique de la double ionisation à deux photons est affectée par l'un de ces états en particulier. Nous clôturerons ce manuscrit en présentant quelques perspectives.

Nous utiliserons préférentiellement les unités atomiques, bien que les électrons-volts soient également employés pour les énergies.

¹Dans le cadre de ce manuscrit, nous entendons par corrélations électroniques l'interaction électrostatique répulsive intervenant entre chacun des électrons du système atomique.

Première partie

Théorie Coulomb-Volkov et
dynamique de l'atome
d'hydrogène en interaction avec
des impulsions laser intenses et
brèves

Introduction

POUR un champ électromagnétique, le qualificatif d'intense est une notion qui doit nécessairement être reliée à une référence. La communauté des physiciens atomiciens l'ont définie comme l'intensité I_0 d'un rayonnement dont le champ électrique est celui que subit l'électron d'un atome d'hydrogène sur la première orbite de Bohr. Le rapport de l'intensité I de n'importe quel champ à I_0 (cf. Annexe A) définit une valeur qui nous permet de qualifier l'intensité de ce champ² et qui est objectivement liée à ce qui est étudié. Dans le cadre de processus atomiques induits par des impulsions laser, elle est donc définie comme il suit

$$\left\{ \begin{array}{ll} \frac{I}{I_0} \ll 1 & \text{champ peu intense ou faible} \\ \frac{I}{I_0} \approx 1 & \text{champ intense ou fort} \\ \frac{I}{I_0} \gg 1 & \text{champ très intense} \end{array} \right. \quad (3)$$

où I est l'intensité crête de l'impulsion. Par analogie, la référence temporelle est la période durant laquelle un électron parcourt cette même orbite. D'un point de vue classique, et en considérant une révolution circulaire, elle est approximativement de $\tau_0 = 152$ attosecondes ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). Comparativement, la notion d'impulsion brève s'applique pour des rapports $\frac{\tau}{\tau_0}$ de l'ordre de 10, c'est-à-dire pour des impulsions de durée femtoseconde. Encore une fois, ceci n'est valable que pour l'étude de la dynamique électronique atomique. Le tableau suivant (cf. TAB. 1) résume dans ce cadre, les qualificatifs caractérisant l'impulsion en fonction de sa durée.

²Il est évident qu'elle sera susceptible de beaucoup évoluer dans les années qui viennent.

Nanoseconde ($1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$)	impulsion très longue
Picoseconde ($1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$)	impulsion longue
Femtoseconde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$)	impulsion brève
Attoseconde ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$)	impulsion ultra-brève

TAB. 1 – Qualificatifs d’une impulsion en fonction de sa durée

La mise œuvre du principe d’amplification d’impulsion à dérive de fréquence dans le milieu des années 1980 [24] (« Chirped Pulse Amplification » ou CPA), permet maintenant d’atteindre des intensités de $10^{21} \text{ W.cm}^{-2}$ et de courte durée, de l’ordre de 35 fs . Le développement de ces impulsions brèves a permis l’exploration d’une dynamique atomique jusqu’alors interdite. En effet, l’apparition d’une largeur spectrale importante associée à ces nouvelles échelles de temps autorise des transitions photoniques vers un plus grand nombre de niveaux atomiques. Ainsi, et c’est l’une des caractéristiques essentielles de l’emploi d’impulsions brèves, une multitude de voies (ou « chemins quantiques ») se trouvent désormais ouvertes et vont pouvoir interférer entre elles. L’étude générale de ces phénomènes s’en trouve donc amplement compliquée. Par ailleurs, si on s’intéresse au nombre de photons contenus dans une impulsion d’un laser IR de type Titane-Saphir de la chaîne kHz Aurore à 800 nm du CELIA, d’énergie $\omega = 0,057 \text{ u.a.}$ ($1,55 \text{ eV}$) et d’intensité $I = 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$, il est de $\mathcal{N} \simeq 1,5 \cdot 10^{24}$ photons pour un volume d’un cm^3 . En regard de la quantité disponible, tous les processus multiphotoniques que l’on va évoquer ensuite ne font intervenir qu’un très petit nombre de photons. Pratiquement, cela se traduit en considérant le champ laser comme un réservoir infini de photons. Ceci a une conséquence importante car une description « classique » du champ laser sera alors tout à fait suffisante.

Récemment, la production de rayonnements VUV secondaires par la génération d’harmoniques d’ordre élevé (GHOE) [25, 26] dont l’une des caractéristiques est la durée attoseconde [7] met à notre portée les outils pour sonder la matière à l’échelle de ses propres grandeurs. Cependant, pour en extraire une information pertinente, nous allons tout d’abord définir quels sont les grands principes de l’interaction entre la lumière et la matière à l’échelle atomique. C’est le but du premier chapitre de cette partie. Nous y passerons également en revue les quelques techniques théoriques déjà existantes dont une en particulier est disponible au CELIA. Le chapitre 2 va reprendre les éléments de base de l’approche Coulomb-Volkov pour la description de processus multiphotoniques dans les atomes d’hydrogène et d’hélium. Nous y verrons la construction des états de Coulomb-Volkov et pourquoi ces états sont à même de décrire les transitions multiphotoniques mais aussi les diffi-

cultés liées au changement de jauge. Puis, nous développerons formellement les amplitudes de transition pour l'excitation des premiers états liés de l'hydrogène et pour l'ionisation double de l'hélium. Enfin, le troisième et dernier chapitre sera consacré à l'application de ces amplitudes développées pour l'hydrogène quand les paramètres de l'impulsion laser sont d'une part une intensité hors conditions de perturbations et d'énergie de photon supérieure au potentiel d'ionisation et d'autre part une intensité modérée et une énergie de photon inférieure à la moitié du potentiel d'ionisation. Nous décrirons également en détail pourquoi une méthode Coulomb-Volkov de ce type ne permet de décrire que des transitions directes, sans passage éventuel par des états intermédiaires.

Chapitre 1

L'interaction laser-atome en champ intense et bref

1.1 Introduction

DÈS que la notion de « quantum de lumière » (dénommé « photon » par G.N. Lewis en 1926) a été définie par A. Einstein lors de la publication de ses cinq papiers fondamentaux dans « Annalen der Physik » en 1905, la possibilité de processus multiphotoniques (absorption ou émission de plus d'un « quantum de lumière » lors d'une transition atomique) est évoquée. A titre d'exemple

« Quand le nombre de quanta d'énergie par unité de volume simultanément transformés est suffisamment grand, un quantum de lumière émise peut obtenir son énergie de plusieurs quanta d'énergie. »

-Annalen der Physik **17**, 132 (1905)-

Dès lors, une très grande variété de processus atomiques induits par des photons ont été observés et analysés. Nous allons spécifiquement nous pencher sur trois d'entre eux, dont les deux premiers constituent des thématiques fondamentales du groupe « Harmoniques et applications » du CELIA. Tous sont associés à l'interaction fortement non linéaire entre un atome et un champ laser intense.

1.2 Processus multiphotoniques dans les atomes

L'importance de ces processus est déterminante puisqu'ils apparaissent à tous les domaines d'énergie de photon du laser incident. Cependant, comme nous l'avons souligné, la dynamique induite peut être très différente selon les caractéristiques intrinsèques de cette impulsion.

1.2.1 Ionisation multiphotonique et « Above Threshold Ionisation » (ATI)

L'ionisation multiphotonique consiste en l'absorption simultanée d'un certain nombre de photons menant l'atome A dans un état ionisé. Elle peut être résumée par la réaction suivante



où n est le nombre minimum de photons d'énergie ω correspondant à la fréquence centrale de la distribution en énergie de l'impulsion, que requiert l'ionisation. Cependant, si l'on observe le processus avec attention, toute une dynamique faisant intervenir les états atomiques quasi-résonants peut intervenir. La FIG. 1.1 représente la structure atomique de l'hydrogène irradié par une impulsion laser IR décrite en introduction, et pour laquelle $n = 9$. Dans ce cas, la largeur spectrale $\Delta\omega$ du laser permettrait d'atteindre les états 2ℓ pour $n = 7$ et 3ℓ pour $n = 8$ par exemple.

Historiquement, les premières preuves expérimentales de ce phénomène datent du milieu des années 60 [27, 28] ; elles ont été poursuivies par plusieurs groupes, en particulier celui de Saclay [29, 30] où le rendement d'ions produits a été étudié en fonction de l'intensité du laser. Avec les intensités peu élevées disponibles alors, il a été observé que le taux de n -ionisation Γ_n en s^{-1} suit les prédictions de la théorie des perturbations à l'ordre le plus bas (TPOB)

$$\Gamma_n = \frac{\sigma_n I^n}{\omega^n} \quad [s^{-1}] \quad (1.2)$$

où σ_n est la section efficace généralisée en $cm^{2n}.s^{n-1}$. Cette approche théorique sera décrite plus en détail par la suite (cf. §1.3.2). Vers la fin des années 70 et jusqu'aux années 80, l'étude des résonances a pris une importance tant expérimentale [31, 32] que théorique avec des méthodes semi-perturbatives telles que le modèle des « états essentiels ». Il s'agit de modéliser l'atome par un où plusieurs états liés susceptibles de contribuer activement et permettant une description suffisante des processus en jeu. Plusieurs approches ont alors vu le jour parmi lesquelles nous pouvons citer [33], fondée sur la

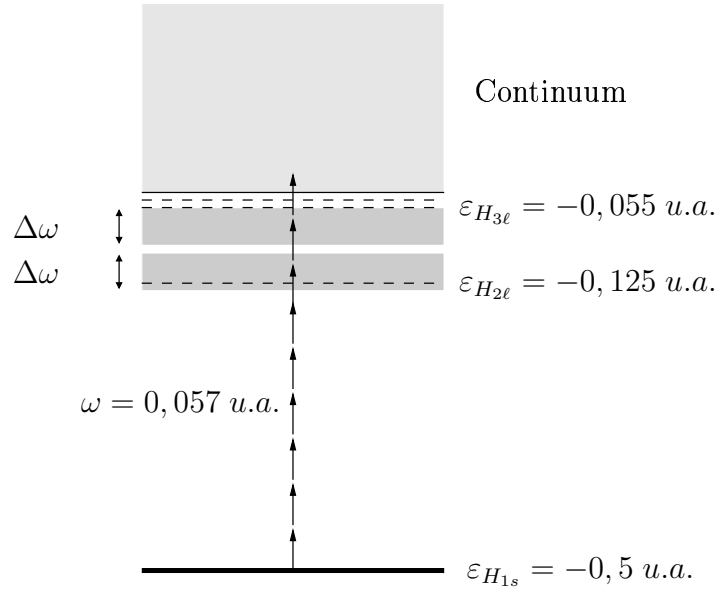


FIG. 1.1 – Ionisation d'un atome d'hydrogène par une impulsion laser IR de 800 nm.

matrice densité et [34], développée sur une base de B-splines (dont nous reparlerons également). Ces méthodes ont l'avantage d'être adaptées à l'étude de processus multiphotoniques à des intensités modérées. En outre, elles ont permis de mettre en lumière le rôle du déplacement des états liés sous l'action du champ, et par conséquent leur contribution à l'ionisation multiphotonique. Cependant, des difficultés surviennent par exemple lors du calcul des éléments de matrice de transition continuum-continuum.

Parallèlement, le phénomène d'ionisation au-dessus du seuil (« Above Threshold Ionization » ou ATI) fut découvert [35], puis confirmé et étudié ensuite sous différentes conditions expérimentales [36, 37, 38, 39] en détectant le spectre en énergie des électrons éjectés. A des intensités de l'ordre de $10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$, l'irradiation par une impulsion d'un laser Titane-Saphir d'un atome entraîne l'absorption d'un nombre supplémentaire de photons au-delà des n nécessaires pour l'ionisation. La principale caractéristique du spectre ATI est la séparation des pics d'absorption par l'énergie ω du photon laser, la largeur de ces pics étant directement liée à celle de l'impulsion laser. Un spectre représentatif est donné par la FIG. 1.2 suivante [40].

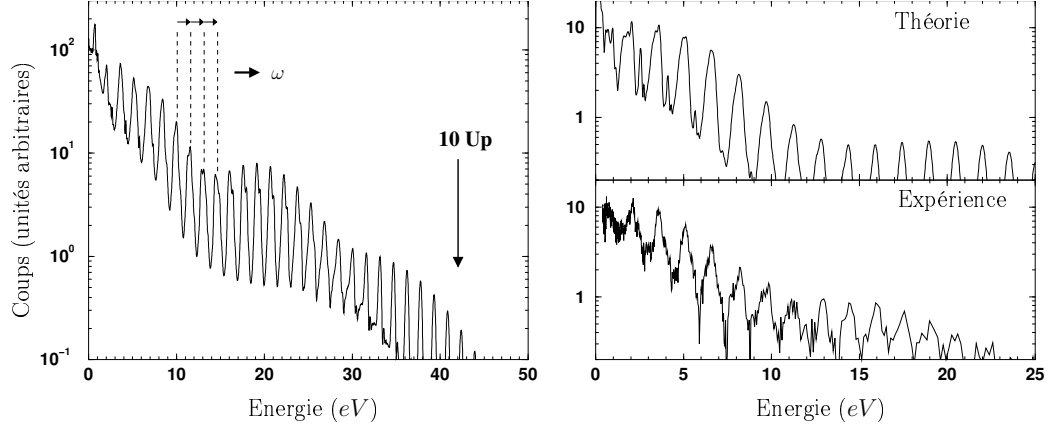


FIG. 1.2 – Spectres en énergie des électrons éjectés créés dans l'argon par une impulsion laser IR à 800 nm , d'intensité crête $I = 5.10^{13}\text{ W.cm}^{-2}$ et de durée à mi-hauteur de 40 fs .

Spectres caractéristiques de l'ATI

Cependant, un certain nombre de phénomènes atypiques se produisent lorsque l'intensité augmente et que l'on sort du régime perturbatif : les pics de plus haute énergie apparaissent dans le spectre électronique alors que ceux de plus basse énergie disparaissent (suppression de pics) [36, 41, 42]. De plus, l'amplitude ne suit plus les prédictions de la TPOB. Dans ce cas, il faut recourir à des théories non-perturbatives (cf. §1.3) pour en donner une explication qualitative [43, 44]. En présence d'un champ laser, les énergies des états atomiques peuvent être écrites comme

$$\varepsilon = \varepsilon_i + \Delta - i\frac{\Gamma}{2} \quad (1.3)$$

où ε_i est l'énergie de l'état initial non perturbé, Δ la correction en énergie correspondant au déplacement lumineux (effet Stark dynamique) et Γ est le taux d'ionisation total (ou largeur) de l'état. Pour les petites fréquences, l'effet Stark dynamique est faible pour les états liés les plus profonds. A contrario, il est relativement important pour les états de Rydberg et tend vers l'énergie pondéromotrice U_p à mesure que l'on se rapproche du seuil d'ionisation [43, 45, 46]. Cette énergie peut être interprétée comme l'énergie moyenne de vibration de l'électron dans le champ électrique et peut se calculer par la formule simple

$$U_{p[u.a.]} = \frac{I_{[W.cm^{-2}]}}{14,04.10^{16} \times \omega_{[u.a.]}^2} \quad (1.4)$$

Elle a pour effet de déplacer le seuil d'ionisation (dénommé $I_p(0)$) en fonction de l'intensité de l'impulsion. On peut grossièrement approcher ce déplacement par l'équation au premier ordre de la TPOB

$$I_p(I) \simeq I_p(0) + \beta \frac{I}{\omega^2} \quad (1.5)$$

Ainsi, quand I augmente, le seuil d'ionisation croît linéairement [47]. Un nombre plus important de photons est alors nécessaire pour ioniser menant de fait à la disparition des pics de plus basse énergie et l'apparition de ceux d'énergie plus élevée.

De plus, pour des impulsions courtes et des intensités inférieures à $10^{14} W.cm^{-2}$ l'apparition de sous-structures dues aux passage par des états intermédiaires désormais accessibles a été observée [48]. Encore une fois il est possible d'interpréter ce phénomène par des résonances induites par le décalage lumineux [49]. La FIG. 1.3 suivante résume schématiquement ces deux phénomènes.

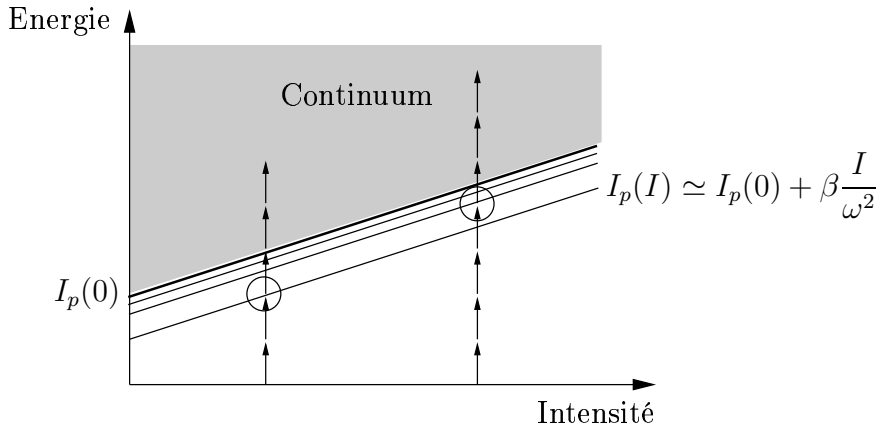


FIG. 1.3 – Illustration du déplacement des niveaux dû à l'effet Stark dynamique et de l'apparition de sous-structures dans le spectre ATI.

1.2.2 La génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE)

Le mécanisme de GHOE est l'une des thématiques d'interaction laser-atome qui suscite un vif intérêt tant chez les physiciens expérimentateurs que théoriciens. Nous allons brièvement regarder quelles sont les principales

caractéristiques d'un tel rayonnement, observé pour la première fois dans les gaz rares [50] puis avec de fortes intensités [51]. Il s'agit d'un processus produisant une source de rayonnement VUV impulsif à partir d'un rayonnement IR primaire, qui présente des propriétés de cohérence spatiale et temporelle [52, 53] et de faible divergence [54]. Spectralement, c'est un peigne dont les composantes pour les atomes, sont des harmoniques d'ordre impair de la fréquence du rayonnement IR. Ceci s'explique par les règles de sélection régissant les transitions dipolaires électriques entre deux états atomiques dont les moments angulaires vérifient $\Delta\ell = \pm 1$. Ce spectre est divisé en trois grandes zones : une décroissance de l'intensité des premiers ordres, suivie d'une zone d'intensité constante appelée « plateau » et enfin une zone où l'intensité diminue fortement avec l'ordre harmonique, appelée la « coupure ». En outre, l'analyse temporelle du spectre harmonique fait apparaître un train d'impulsions dont la durée est de quelques centaines d'attosecondes [55].

Spectres caractéristiques d'une GHOE

La FIG. 1.4 illustre les caractéristiques précitées ; il s'agit cependant d'une reconstruction de spectre par une méthode que l'on exposera au paragraphe suivant. Toutefois, les spectres expérimentaux ne sont pas tout à fait identiques car la présence de filtres (en particulier d'aluminium) ayant pour rôle de s'affranchir du rayonnement IR primaire, atténue également le signal des harmoniques basses en dessous de 17 eV et hautes au-dessus de 45 eV, soit une gamme harmonique comprise entre les ordres 11 et 45 (cf. FIG. 1.5) [55].

Le modèle théorique semi-classique en trois étapes

Proposé par H.B. Van Linden van der Heuvell et H.G. Muller [56] puis repris et développé par P.B. Corkum [57], K.C. Kulander [58] et M. Lewenstein [59], ce modèle fondé sur l'approximation des champs forts (« Strong Field Approximation » ou SFA) permet d'expliquer en trois étapes un certain nombre de caractéristiques du spectre harmonique. Les grandes lignes sont les suivantes : création d'un paquet d'onde électronique lors de l'ionisation de l'atome par effet tunnel durant chaque demi-cycle de la période laser. Dans ce cas, une approche quasi-statique de l'ionisation d'un électron (« Single Active Electron » ou SAE) est utilisée à la limite des petites fréquences laser (théorie KFR ou ADK cf. §1.3.2). De plus, seul l'état initial et les états du continuum seront considérés. Une fois le paquet d'onde électronique créé, il va interagir avec le champ laser moyennant un certain nombre d'approximations : sa vitesse est initialement nulle, il n'est plus soumis au

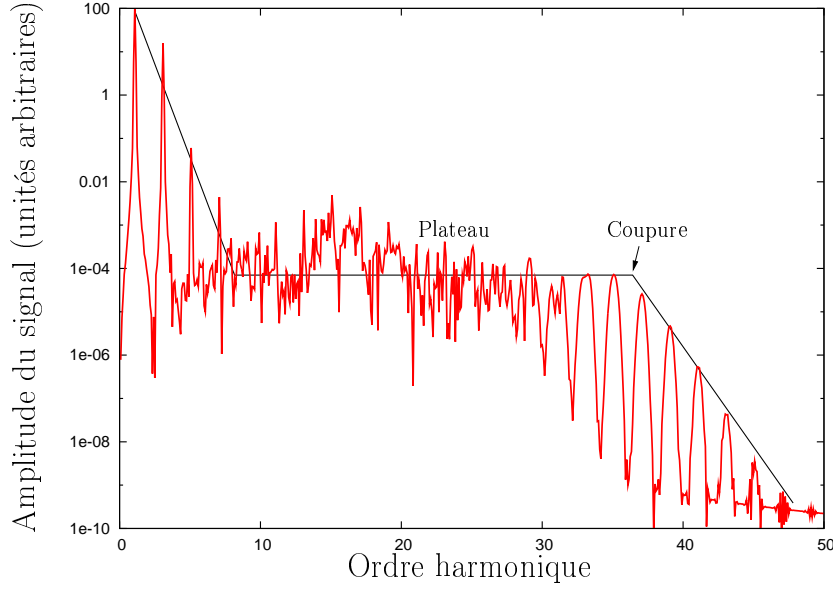


FIG. 1.4 – Spectre harmonique généré dans l'argon par une impulsion laser IR à 800 nm , d'intensité crête $I = 2.10^{14}\text{ W.cm}^{-2}$ et de durée à mi-hauteur de 30 fs reconstruit à partir d'une méthode SFA.

champ Coulombien de l'ion résiduel et ce dernier est insensible au champ laser. Une approche classique est alors suffisante pour décrire les trajectoires électroniques dans le continuum et soumises à la polarisation linéaire du laser. Elles vont le mener (ou non auquel cas il ne participe plus à la GHOE) au voisinage de l'ion avec un gain substantiel en énergie cinétique et contribuer, par recombinaison radiative, à l'émission de photons harmoniques dans la région du plateau. L'étude des instants t_i de « naissance » de ce paquet d'onde est d'une importance cruciale pour bien comprendre la GHOE. En effet, trois types de trajectoires correspondant à trois domaines de naissance (que l'on peut caractériser par des domaines de phase ωt_i) vont se distinguer [55] : celles pour lesquelles l'électron ne revient pas au voisinage de l'ion parent, celles pour lesquelles la recombinaison est possible et caractérisées par un temps d'évolution « long » dans le continuum correspondant à $\omega t_i < \frac{\pi}{10}$, enfin celles pour lesquelles la recombinaison est possible et caractérisées par un temps d'évolution « court » correspondant à $\omega t_i > \frac{\pi}{10}$. Ce modèle montre que le gain maximal que peut obtenir l'électron au moment de son retour est de $3,17U_p$ correspondant à la phase limite $\omega t_i = \frac{\pi}{10}$. Ce qui mène à la « loi de coupure » [57].

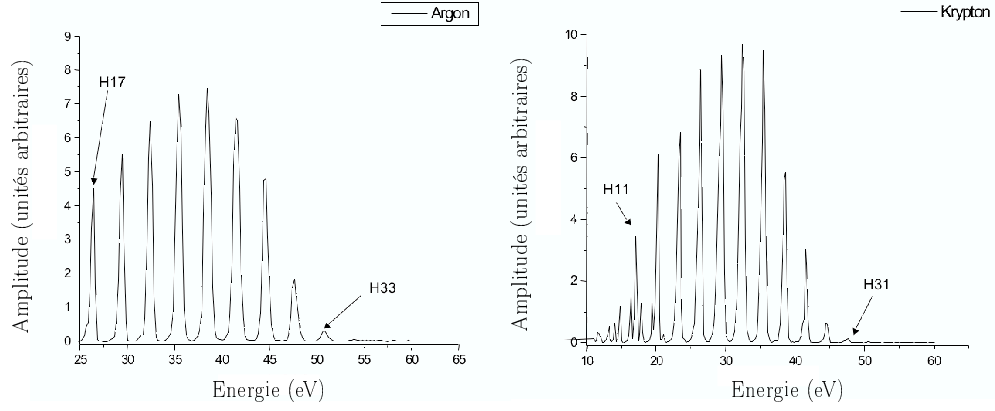


FIG. 1.5 – Spectres harmoniques expérimentaux générés dans des gaz d'argon et de krypton irradiés par une impulsion laser IR à 800 nm , d'intensité crête $I = 2.10^{14}\text{ W.cm}^{-2}$ et de durée à mi-hauteur de $30\text{-}35\text{ fs}$.

$$\omega_c = I_p + 3,17U_p \quad (1.6)$$

définissant la fréquence harmonique ω_c à partir de laquelle se produit l'atténuation rapide du signal en fonction du potentiel d'ionisation I_p et de l'énergie pondéromotrice U_p . Dans le cas où l'électron est à proximité de l'ion mais que la recombinaison ne se produit pas, il peut rentrer en collision avec les électrons de l'ion et conduire à l'ionisation multiple [31], ou absorber un certain nombre de photons contribuant ainsi à l'apparition d'un plateau dans le spectre ATI [60], ou encore être diffusé par le coeur ionique et mener à une structure en « anneaux » dans le spectre angulaire [61].

1.2.3 Les collisions électrons-atomes assistées par laser

Quand une particule chargée, par exemple un électron, est diffusée en présence d'une onde électromagnétique, elle peut échanger de l'énergie avec le champ. Comme l'absorption d'énergie est dominante par rapport à l'émission, ce phénomène est d'une importance cruciale pour l'étude de la formation et du chauffage de plasmas dans les gaz. En particulier, de nombreux phénomènes d'ionisation multiphotonique et de « bremsstrahlung inverse » sont à l'origine d'électrons de haute énergie lors de la phase de croissance de l'impulsion. Cette problématique s'est développée dans les années 70 mais les expériences restent difficiles à réaliser. Voici quelques exemples de ce type de processus

$$\begin{cases} e^- + A + n\omega \longrightarrow A + e^- \\ e^- + A + n\omega \longrightarrow A^* + e^- \\ e^- + A + n\omega \longrightarrow A^+ + 2e^- \end{cases} \quad (1.7)$$

Ici, trois cas sont à considérer : $n > 0$ absorption de n photons aussi appelé « bremsstrahlung inverse », $n < 0$ émission de n photons aussi appelé « bremsstrahlung stimulé » et enfin $n = 0$ qui est un processus collisionnel sans absorption ni émission mais en présence du champ laser. L'idée est d'étudier quelle peut être l'influence des paramètres du champ laser comme l'intensité, la fréquence et la polarisation sur les collisions. De nouveaux effets sont recherchés sur les distributions angulaires, les résonances ou les interférences. Les expériences sont fondées sur le principe des trois faisceaux constitués par les électrons, les atomes et enfin le laser. Les premières ont été initiées dès 1976 [62] à l'aide de laser CO_2 où l'on voit clairement apparaître le gain et la perte d'un photon du laser dans le spectre en énergie des électrons diffusés. Puis la première observation de processus multiphotoniques en 1977 [63] où le spectre présente des pics aux énergies correspondant soit à l'absorption ou l'émission d'un petit nombre de photons. Parmi les premiers travaux théoriques menés, on peut citer ceux de N.M. Kroll et K.M. Watson [64] donnant des sections efficaces différentielles de diffusion inélastique quantiques et classiques. Il apparaît alors dans l'approximation des petites fréquences laser ou du potentiel de diffusion faible que la correction quantique est négligeable quand les effets multiphotoniques sont dominants. Cependant, la plupart des approches qu'elles soient classiques, fondées sur un traitement explicite de la dynamique de diffusion électron-ion par des interactions élastiques et instantanées [65] ou quantiques, dont la description de l'échange d'énergie entre les photons et les électrons est fondée sur la section efficace différentielle [66], sont issues de l'approximation classique des petites angles de diffusion et des petits transferts d'impulsion ou de son équivalent quantique, l'approximation de Born. Il a été démontré récemment [67] que des trajectoires électroniques irrégulières combinées à des champs laser haute fréquence et un champ Coulombien mènent à une augmentation très importante des taux de chauffage plasma, remettant ainsi en cause les approximations précédentes. Ce champ de recherches devant donc se développer dans le contexte de la physique des plasmas.

1.3 Etat de l'art théorique

L'accès plus aisé aux supercalculateurs a permis l'élaboration puis la mise en œuvre de codes de plus en plus complexes et demandeurs en ressources in-

formatiques. La voie était de fait tracée pour des théories non-perturbatives et « globales ». Non-perturbatives car elles devaient répondre aux besoins d'une modélisation en champ de plus en plus fort et globales parce qu'elles peuvent couvrir très précisément l'ensemble de la structure atomique. Cependant celles-ci restent peu maniables et l'extraction d'informations pertinentes devient ardue dès que le nombre de dimensions du problème augmente, en particulier dès qu'il s'agit de décrire des systèmes à plus d'un électron. Les méthodes approchées quant à elles fournissent une grosse partie du patrimoine conceptuel mais ont comme désavantage de reposer sur des approximations qui leur imposent un domaine de validité.

1.3.1 Traitement global

Dans le contexte de l'interaction multiphotonique avec des atomes complexes, les méthodes globales et non perturbatives tendent à résoudre complètement l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT)

$$i\frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \mathcal{H} |\Psi(t)\rangle \quad (1.8)$$

Ainsi aucune ou très peu d'approximations sont faites sur le système lui-même ou son Hamiltonien. Elles sont pour cette raison dénommées « ab initio ». Le choix du support (base d'états ou grille de points) plus ou moins complet suivant la précision voulue, est d'une importance fondamentale. Deux grands types de méthodes se distinguent. Le premier regroupe les méthodes fondées sur la résolution de l'ESDT, soit par décomposition de la partie radiale de la fonction d'onde soit sur une grille de points à deux dimensions [68, 69, 70], soit sur une base formée par l'ensemble des fonctions radiales des états propres de l'atome non perturbé, méthode dite « spectrale » [34, 71]. Cette décomposition peut aussi se faire sur des fonctions aux propriétés adaptées comme par exemple les B-splines [72, 73]. Nous pouvons aussi citer des variantes perturbatives telles que CCC (« Convergent Close Coupling »), appliquée avec succès à la description des collisions électrons-hydrogène [74, 75]. Cette dernière est indépendante du temps et décrit la fonction d'onde totale du système sur une base complète orthonormale de polynômes de Laguerre. Elle a depuis été adaptée à la double ionisation de l'hélium [76, 77]. Egalement, il existe une méthode intégrant des transformations ECS (« Exterior Complex Scaling ») c'est-à-dire une rotation dans le plan complexe ayant pour but de traiter de façon adéquate le comportement asymptotique des fonctions d'onde [78, 79, 80]. Un autre type de décomposition sur une base de fonctions Sturmienne est aussi à l'étude [81, 82, 83, 84, 85, 86]. Le deuxième groupe englobe les traitements fondés sur la théorie de Floquet [87] et la matrice R

[88]. Voici deux exemples de méthodes globales et non-perturbatives dont le premier est disponible au CELIA.

Résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps sur une base de B-splines

Il s'agit d'interpoler la partie radiale des fonctions d'onde atomiques par des fonctions B-splines [89] en tirant parti de leur symétrie sphérique. La partie angulaire reste quant à elle représentée par les harmoniques sphériques particulièrement bien adaptées à la description de la structure atomique. Formellement, une B-spline $B_i^k(r)$ d'ordre k est constituée de polynômes d'ordre $k - 1$ définis positifs par morceaux dans une région finie (support compact) de l'espace ; elle est nulle en dehors de celui-ci ce qui permet des calculs très rapides et très stables. Bien qu'il existe une définition complète d'une fonction B-spline, elles sont générées par une relation de récurrence satisfaisant la condition suivante

$$\sum_j B_j^k(x) = 1 \quad \forall x \quad (1.9)$$

et forment une base complète de l'espace. Toute fonction peut donc être écrite comme une superposition linéaire de B-splines et en particulier toute partie radiale d'une fonction d'onde d'un système réduit à une particule

$$\mathcal{R}_{n,\ell}(r) \simeq \sum_i c_i B_i^k(r) \quad (1.10)$$

ce qui nous amène à la fonction d'onde $\Psi(\vec{r}, t)$ écrite en coordonnées sphériques, deux approches existent pour représenter la fonction solution de l'ESDT

$$\left\{ \begin{array}{l} \Psi(\vec{r}, t) = \sum_{i,\ell,m} c_i(t) \mathcal{R}_{n,\ell}(r) \mathcal{Y}_\ell^m(\theta, \phi) \\ \Psi(\vec{r}, t) = \sum_{i,\ell,m} \tilde{c}_i(t) \frac{B_i^k(r)}{r} \mathcal{Y}_\ell^m(\theta, \phi) \end{array} \right. \quad (1.11)$$

Il s'agit donc d'une représentation vectorielle dont les composantes sont les coefficients $c_i(t)$ et $\tilde{c}_i(t)$. Afin de connaître l'état d'un système atomique après interaction avec un champ laser, il faut résoudre l'ESDT pour chaque pas de temps sur la base décrite précédemment. Dans le premier cas, la décomposition de la fonction radiale sur des états atomiques solutions du Hamiltonien sans interaction mène à un problème « non raide » [90]. Le pas de temps est suffisamment grand et des méthodes « explicites » d'intégration du type Runge-Kutta sont alors satisfaisantes. Dans le second cas, il s'agit

d'un problème « raide » que seule une méthode « implicite » peut résoudre. La fonction d'onde initiale est ainsi propagée à l'aide d'une forme de Crank-Nicholson [73, 91] et la fonction finale obtenue après interaction est projetée sur l'état atomique désiré afin de connaître l'amplitude de transition dans la voie choisie.

Le premier avantage de ces fonctions est la possibilité d'étendre le rayon R de l'espace radial (ou « sphère numérique ») à l'intérieur duquel N fonctions B-splines seront définies sur leurs supports respectifs. L'intervalle radial $[0, R]$ est ainsi découpé en sous-intervalles dont la répartition (pas nécessairement équidistante) dépendra d'une séquence de points d'arrêts choisie. Il faut cependant imposer des conditions de continuité à ces points, qui s'expriment en fonction de l'ordre k et de $m_i \in [1, k]$ la multiplicité du point d'arrêt. La relation de raccordement définissant la continuité de la fonction B-spline et de ses dérivées jusqu'à l'ordre $m_i - 1$ s'exprime par sa classe C^{k-1-m_i} . Ainsi, $m_i = 1$ implique que $B^k(r)$ est continue au point d'arrêt considéré, $m_i = 2$ implique que $B^k(r)$ et sa dérivée première sont continues etc. Le deuxième avantage est que les intégrales portant sur les B-splines peuvent être évaluées numériquement avec une précision suffisante en utilisant la méthode d'intégration de Gauss. Si l'on choisit l'ordre des B-splines égal à k , chaque B-spline sera non nulle sur k sous-intervalles successifs. Cette propriété donne un troisième avantage à cette méthode par le fait que les matrices écrites dans cette base seront des matrices bandes (c'est-à-dire ne comportant que des éléments non nuls sur une bande diagonale de largeur $2k - 1$). L'utilisation d'algorithmes adaptés permet de résoudre le problème aux valeurs propres avec un minimum de ressources informatiques.

L'un des soucis majeurs concerne l'extension de ce genre de théorie à des systèmes plus complexes sans une refonte fondamentale des codes informatiques. De plus et comme nous l'avons déjà souligné, dès que l'étude porte sur l'interaction d'un champ laser avec des systèmes polyélectroniques, le nombre de dimensions du problème devient élevé et beaucoup plus difficile à résoudre.

La méthode R-matrice Floquet

Cette méthode a été présentée par P.G. Burke, P. Francken et C.J. Joachain [92] et combine les avantages de la R-matrice initiée par E. Wigner [93, 94, 95] permettant de calculer les résonances lors des collisions entre particules et de la théorie de Floquet [96]. L'ambition est d'unifier une description des processus multiphotoniques, de la génération d'harmoniques et des collisions électrons atomes assistées par laser. C'est une méthode non-perturbative qui peut aussi être appliquée et étendue à n'importe quel atome. Il s'agit de

diviser l'espace des configurations en deux sous-espaces où l'ESDT est résolue en utilisant le théorème de Floquet afin de la réduire à un problème indépendant du temps. Une région « interne » définie pour chaque électron dont le rayon vecteur doit satisfaire $r_i \leq a \ \forall i \in [0, n_e]$, avec n_e le nombre d'électrons du système, et où la sphère de rayon a enveloppe la distribution de charges des états atomiques considérés. Une région « externe » définie telle qu'un électron se situant sur ou à l'extérieur de la sphère de rayon a et laisse n_e autres électrons confinés à l'intérieur de cette sphère. La forme optimum du Hamiltonien sera utilisée en sélectionnant la jauge la plus appropriée (cf. §1.4.2) en particulier la jauge des longueurs pour la région interne et la jauge des vitesses pour la région externe. Pourtant, sous certaines conditions, il apparaît intéressant de transformer cette jauge pour des larges rayons en jauge des accélérations de Kramers-Henneberger. Il s'agit des situations où les conditions asymptotiques ne sont pas les mêmes que dans le cas sans interaction, en particulier quand l'état final de l'électron diffère d'un état de Volkov (cf. eq.(1.37)). La FIG. 1.6 suivante résume les idées précédentes

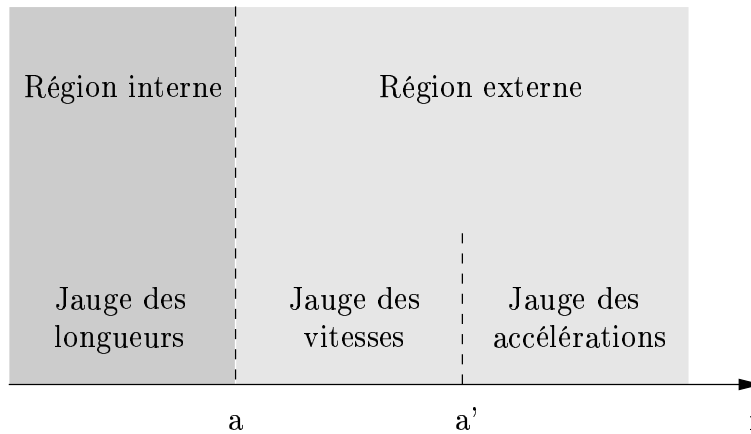


FIG. 1.6 – Représentation schématique des régions de la R-matrice.

A la limite $r = a$, les solutions sont raccordées en utilisant la R-matrice reliant les fonctions d'onde radiale et leurs dérivées. A la limite $r = a'$, les solutions sont transformées en jauge d'accélération de Kramers où les conditions aux limites appropriées sont imposées pour $r \rightarrow +\infty$ c'est-à-dire : les conditions aux limites de Siegert [97] pour l'ionisation multiphotonique et la génération d'harmoniques ; les conditions aux limites de la K-matrice [98] pour les collisions électron-atome assistées par laser.

L'une des limitations essentielles à cette théorie est son extension pour des impulsions très courtes. Dès lors, le champ laser ne peut plus être considéré

comme monochromatique et la théorie de Floquet n'est plus valable. Son application a cependant couvert de très vastes domaines allant de l'étude de l'ionisation multiphotonique de l'hydrogène [99], de H^- et de l'hélium [100], du néon, de l'argon [101] ou du strontium [102] en passant par l'étude des résonances et des états dégénérés induits par laser [103] et des ionisations à deux couleurs [104] ou la génération d'harmoniques dans l'hydrogène [105] mais aussi la diffusion électronique assistée par laser lors de collisions avec des atomes [106].

1.3.2 Traitement approché

Les méthodes approchées se fondent, comme leur nom l'indique sur une ou plusieurs approximations dans le développement théorique. Cependant, il y a divers degrés d'approximation en fonction non seulement de leur origine (fonction d'onde, négligence de certains termes physiques) et de leur impact, et sont très souvent issues de la théorie des perturbations.

Les équations couplées

Nous allons tout d'abord développer la méthode des équations couplées pour résoudre l'ESDT, elle nous permet de visualiser les différents couplages et les approximations qui seront utilisés par la suite. Il s'agit de donner un exemple pour un atome hydrogénoïde plongé dans un champ laser, mais la généralisation peut être faite à des atomes polyélectroniques. Dans la représentation de Schrödinger, l'amplitude de transition T_{fi} d'un état dit « perturbé » $|\Psi_i^+(t)\rangle$ vers un autre état perturbé $|\Psi_f^-(t)\rangle$ d'un système sous l'influence d'une perturbation externe $V(t)$ peut être évaluée à chaque instant t par la formule [107]

$$T_{fi} = \langle \Psi_f^-(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \quad (1.12)$$

où les fonctions d'onde $\Psi_i^+(\vec{r}, t)$ et $\Psi_f^-(\vec{r}, t)$ sont solutions de l'ESDT (1.8) projetée dans l'espace des configurations

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) = \mathcal{H} \Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) = [\mathcal{H}_0 + V(t)] \Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) \quad (1.13)$$

et où l'indice supérieur \pm indique que le caractère respectivement « sortant » ou « entrant » [107]. Par ailleurs, elles sont soumises aux conditions asymptotiques suivantes

$$\Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) \xrightarrow[t \rightarrow \mp\infty]{} \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \quad (1.14)$$

avec $\Phi_{i,f}(\vec{r}, t)$ solutions de l'équation « non perturbée »

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) = \mathcal{H}_0 \Phi_{i,f}(t) = \varepsilon_{i,f} \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \quad (1.15)$$

Il est alors possible de décomposer les fonctions d'onde $\Psi_i^\pm(\vec{r}, t)$ et $\Psi_f^\pm(\vec{r}, t)$ sur la base des états non perturbés comme une somme de fonctions d'onde $\Phi_n(\vec{r}, t)$ et $\Phi_{\vec{k}}(\vec{r}, t)$ représentant respectivement les états liés d'énergie négative et les états du continuum d'énergie positive de l'atome. L'ensemble de ces fonctions d'onde forme une base orthonormée telle que

$$\begin{cases} \langle \Phi_n(t) | \Phi_m(t) \rangle = \delta_{nm} \\ \langle \Phi_{\vec{k}}(t) | \Phi_{\vec{k}'}(t) \rangle = \delta(\vec{k} - \vec{k}') \\ \langle \Phi_n(t) | \Phi_{\vec{k}}(t) \rangle = 0 \end{cases} \quad (1.16)$$

Ecrivons maintenant $|\Psi_i^\pm(t)\rangle$ et $|\Psi_f^\pm(t)\rangle$ sur cette base

$$\begin{cases} |\Psi_i^\pm(t)\rangle = \sum_{n=1}^{\infty} a_n(t) |\Phi_n(t)\rangle + \int d\vec{k} a_{\vec{k}}(t) |\Phi_{\vec{k}}^\pm(t)\rangle \\ |\Psi_f^\pm(t)\rangle = \sum_{m=1}^{\infty} a_m(t) |\Phi_m(t)\rangle + \int d\vec{k}' a_{\vec{k}'}(t) |\Phi_{\vec{k}'}^\pm(t)\rangle \end{cases} \quad (1.17)$$

Les coefficients dépendant du temps $a_n(t)$, $a_m(t)$ et $a_{\vec{k}}(t)$, $a_{\vec{k}'}(t)$ sont à déterminer pour obtenir explicitement une expression de $\Psi_i^\pm(\vec{r}, t)$ ou de $\Psi_f^\pm(\vec{r}, t)$. Ils contiennent toute l'information sur la population des états n , m liés ou \vec{k} , \vec{k}' du continuum pendant l'interaction. Ils sont assimilés à une amplitude de probabilité dont $a_i(t)$ en particulier représente celle qu'a l'électron de rester dans son état initial. En outre, quand l'interaction est de durée limitée τ , i.e., $V(t \geq \tau) = 0$ et $V(t \leq 0) = 0$ cela signifie que la limite en $+\infty$ est atteinte à τ , et la limite en $-\infty$ est atteinte à 0, et qu'on peut écrire la condition initiale à laquelle doivent satisfaire tous les coefficients

$$a_\alpha(0) = \delta_{\alpha i} \quad \forall \alpha = (n, \vec{k}) \quad (1.18)$$

Si l'on substitue l'expression $|\Psi_i^\pm(t)\rangle$ de (1.17) dans (1.13) il vient

$$\begin{aligned} i \sum_{n=1}^{\infty} \dot{a}_n(t) |\Phi_n(t)\rangle + i \int d\vec{k} \dot{a}_{\vec{k}}(t) |\Phi_{\vec{k}}^\pm(t)\rangle = \\ \sum_{n=1}^{\infty} a_n(t) V(t) |\Phi_n(t)\rangle + \int d\vec{k} a_{\vec{k}}(t) V(t) |\Phi_{\vec{k}}^\pm(t)\rangle \end{aligned} \quad (1.19)$$

En projetant successivement sur l'état initial $|\Phi_i(t)\rangle$ et sur un état du continuum $|\Phi_k^\pm(t)\rangle$ puis en utilisant l'expression des fonctions d'onde stationnaires

$$\Phi_\alpha(\vec{r}, t) = \varphi_\alpha(\vec{r}) \exp(-i\varepsilon_\alpha t) \quad \alpha = (n, \vec{k}) \quad (1.20)$$

(1.19) nous amène aux équations couplées suivantes

$$\left\{ \begin{array}{l} i\dot{a}_i(t) \exp(-i\varepsilon_i t) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n(t) V_{in}(t) \exp(-i\varepsilon_n t) \\ \quad + \int d\vec{k} a_{\vec{k}}(t) V_{i\vec{k}}(t) \exp(-i\varepsilon_{\vec{k}} t) \\ i\dot{a}_{\vec{k}}(t) \exp(-i\varepsilon_k t) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n(t) V_{kn}(t) \exp(-i\varepsilon_n t) \\ \quad + \int d\vec{k}' a_{\vec{k}'}(t) V_{\vec{k}\vec{k}'}(t) \exp(-i\varepsilon_{\vec{k}'} t) \end{array} \right. \quad (1.21)$$

où les éléments de matrice de transition sont

$$V_{\alpha\beta}(t) = \langle \varphi_\alpha(\vec{r}) | V(t) | \varphi_\beta(\vec{r}) \rangle \quad (\alpha, \beta) = (n, \vec{k}) \quad (1.22)$$

(1.21) nous donne ainsi le calcul de chacun des coefficients $a_\alpha(t) \forall \alpha = (n, \vec{k})$ au travers d'un système d'équations intégral-différentielles. En pratique, la résolution complète d'un tel système est très lourde (cf. §1.3.1) car l'expression matricielle contient des bandes pleines difficilement manipulables. Souvent, il est tronqué aux états dont on souhaite spécifiquement étudier la population et dont on suppose qu'ils jouent un rôle essentiel dans la dynamique qui nous intéresse. Par conséquent, cela limite également le nombre de photons intervenant dans le processus.

L'amplitude de transition

Nous pouvons également extraire des informations concernant la probabilité qu'ont certains processus de se produire car elle est directement reliée à T_{fi} . Le calcul explicite de cette amplitude de transition prend alors toute sa valeur. Si cette dernière est évaluée à $t = 0$ compte tenu de (1.12) il vient

$$T_{fi} = \langle \Psi_f^-(0) | \Psi_i^+(0) \rangle \quad (1.23)$$

A présent, deux formulations « post » et « prior » dont on reparlera plus en détail au chapitre 2 (cf. §2.2) peuvent être distinguées en introduisant les expressions $|\Psi_i^\pm(t)\rangle$ et $|\Psi_f^\pm(t)\rangle$ de (1.17) et en vertu de (1.18)

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = a_i(0) \langle \Phi_f(0) | \Psi_i^+(0) \rangle \\ T_{fi}^- = a_i(0) \langle \Psi_f^-(0) | \Phi_i(0) \rangle \end{cases} \quad (1.24)$$

Puis, les expressions qui précèdent peuvent se réécrire comme

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = a_i(0) \langle \Phi_f(0) | \Psi_i^+(0) \rangle - a_i(\tau) \langle \Phi_f(\tau) | \Psi_i^+(\tau) \rangle \\ T_{fi}^- = a_i(0) \langle \Psi_f^-(0) | \Phi_i(0) \rangle - a_i(\tau) \langle \Psi_f^-(\tau) | \Phi_i(\tau) \rangle \end{cases} \quad (1.25)$$

où nous avons simplement rajouté un zéro. En effet, le second terme du membre de droite de (1.25) est nul du fait de l'orthonormalisation des fonctions d'onde car pour les conditions asymptotiques (1.14) et la condition $\lim_{t \rightarrow +\infty} t = \tau$, les fonctions d'onde évaluées à cet instant s'écrivent $\Psi_{i,f}^\pm(\tau) = \Phi_{i,f}(\tau)$. Nous pouvons donc réécrire (1.25) sous forme intégrale

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = -i \int_0^\tau dt \frac{\partial}{\partial t} [a_i(t) \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle] \\ T_{fi}^- = -i \int_0^\tau dt \frac{\partial}{\partial t} [a_i(t) \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle] \end{cases} \quad (1.26)$$

En développant la dérivation au terme entre crochets puis en utilisant (1.13) et (1.15), (1.26) devient

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = -i \int_0^\tau dt a_i(t) \langle \Phi_f(t) | V(t) | \Psi_i^+(t) \rangle - \int_0^\tau dt \dot{a}_i(t) \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \\ T_{fi}^- = -i \int_0^\tau dt a_i(t) \langle \Psi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle - \int_0^\tau dt \dot{a}_i(t) \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \end{cases} \quad (1.27)$$

Si l'on s'intéresse aux conditions perturbatives, l'état fondamental est considéré comme très peu dépeuplé par la perturbation. Concrètement, $a_i(t)$ apparaissant dans le premier terme du membre de droite de l'expression précédente doit être remplacé par 1 et le second terme est alors nul. Dans ces conditions, cette forme abrégée de l'amplitude de transition sera la base des développements que l'on utilisera par la suite sur l'excitation des premiers états liés de l'hydrogène et l'ionisation de l'hélium. Cependant, (1.27) a un intérêt pratique si l'évaluation de $a_i(t)$ peut se faire simplement. Ce développement prendra toute son importance dès que l'on abordera l'ionisation de l'hydrogène en champ intense car le calcul du dépeuplement de l'état fondamental nous sera donné par la résolution numérique de (1.21) réduite à une transition à deux niveaux.

L'approximation de Born au premier ordre

L'approximation de Born au premier ordre telle qu'elle se déduit de la théorie formelle des collisions est issue de l'expression de $|\Psi_i^+(t)\rangle$ et $|\Psi_f^-(t)\rangle$ évoquées dans (1.12), par les équations de Lippman-Schwinger (ELS) sous leur « seconde forme »

$$|\Psi_{i,f}^\pm(t)\rangle = |\Phi_{i,f}(t)\rangle + G_{i,f}^\pm V_{i,f} |\Psi_{i,f}^\pm(t)\rangle \quad (1.28)$$

où $G_{i,f}^\pm$ est l'opérateur de Green. Par itération, l'équation (1.28) mène à un développement en série de perturbation ou série de Born

$$|\Psi_{i,f}^\pm(t)\rangle = |\Phi_{i,f}(t)\rangle + \sum_{j=1}^N (G_{i,f}^\pm V_{i,f})^j |\Phi_{i,f}(t)\rangle + (G_{i,f}^\pm V_{i,f})^{N+1} |\Psi_{i,f}^\pm(t)\rangle \quad (1.29)$$

L'approximation de Born au premier ordre (Born I) consiste à ne retenir que le premier terme de la série précédente. Ainsi l'amplitude de transition (1.27) devient

$$T_{fi}^{B1} = -i \int_0^\tau dt a_i(t) \langle \Phi_f(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (1.30)$$

Le second terme de (1.27) s'annulant du fait de l'orthogonalité des fonctions d'onde. Il est à noter que dans cette approximation, le caractère entrant ou sortant des fonctions d'onde n'existe plus. Si on se place en conditions de perturbations, le coefficient $a_i(t)$ peut être remplacé par 1 et on arrive à la forme simple

$$T_{fi}^{B1} = -i \int_0^\tau dt \langle \Phi_f(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (1.31)$$

L'approximation de Born constitue un test de validité car c'est une limite de la méthode Coulomb-Volkov que nous désirons exploiter. En ce sens, nous allons utiliser des développements Born en parallèle de notre approche pour discuter de la physique mise en jeu dans chacune d'elles.

Théorie des perturbations à l'ordre le plus bas (TPOB)

Cet exemple est celui d'un développement adapté à la description de processus multiphotoniques quand le champ est peu intense et quand l'interaction se fait avec des impulsions suffisamment « longues ». Dans ce cas, le profil temporel de l'impulsion peut être négligé ou traité adiabatiquement, ce qui mène au calcul d'éléments de matrice indépendants du temps. Pour les

processus multiphotoniques, une description détaillée pourra être consultée dans des articles de revue tels que celui de P. Lambropoulos [108]. Débutons par le développement en série de Born (1.29) d'où l'on déduit le calcul du taux d'ionisation à l'ordre le plus bas de la théorie des perturbations en ne tenant compte que du premier terme non nul. Ainsi, tous les termes supplémentaires représentant des combinaisons d'absorption et d'émission de photons menant à un nombre égal de photons absorbés seront négligés. Il vient donc en posant pour plus de simplicité $|\Phi_i(t)\rangle = |i\rangle$ et $|\Phi_f(t)\rangle = |f\rangle$

$$T_{fi}^n = \langle f | G(GV)^n | i \rangle \quad (1.32)$$

où n est le nombre « le plus bas » de photons absorbés par le système pour passer d'un état initial i à un état final f . Si l'on s'intéresse au taux d'ionisation multiphotonique d'ordre n , il s'exprime comme

$$\Gamma_{fi}^n = \frac{\sigma_{fi}^n I^n}{\omega^n} \quad (1.33)$$

avec I l'intensité de l'impulsion laser, ω l'énergie du photon du faisceau incident et σ_{fi}^n la section efficace généralisée

$$\sigma_{fi}^n = \frac{2\pi}{I_0^n \tau_0} \omega^n |T_{fi}^n|^2 \quad (1.34)$$

où I_0 et τ_0 sont les unités atomiques d'intensité et de temps (cf. Annexe A). Le terme de couplage multiphotonique T_{fi}^n se déduit de (1.32)

$$T_{fi}^n = \sum_{a_{n-1}} \int \cdots \sum_{a_1} \int \frac{\langle f | \vec{r} \cdot \vec{\lambda} | a_{n-1} \rangle \cdots \langle a_1 | \vec{r} \cdot \vec{\lambda} | i \rangle}{[\omega_i + (n-1)\omega - \omega_{a_{n-1}}] \cdots (\omega_i + \omega - \omega_{a_1})} \quad (1.35)$$

Plusieurs remarques sont à faire concernant cette méthode. Tout d'abord, l'expression (1.35) du couplage multiphotonique est valable uniquement s'il n'y a pas d'états intermédiaires résonants. Si l'on s'intéresse à ce cas, l'élément de transition T_{fi}^n devient [108]

$$T_{fi}^n = \sum_{a_1} \int \cdots \sum_{a_{n-1}} \int \frac{\langle f | \vec{r} \cdot \vec{\lambda} | a_{n-1} \rangle \cdots \langle a_1 | \vec{r} \cdot \vec{\lambda} | i \rangle}{(\omega_i - \omega_{a_{n-1}} - R_{a_{n-1}}) \cdots (\omega_i - \omega_{a_1} - R_{a_1})} \quad (1.36)$$

où intervient au dénominateur des éléments de matrice de l'opérateur de déplacement R composés d'une partie réelle correspondant à une correction en énergie (déplacement lumineux ou « Stark shift »), et d'une partie imaginaire

correspondant à la largeur radiative de cet état lors de son couplage avec le continuum. Ainsi, si l'on tient compte de ces résonances, le calcul numérique s'en trouve considérablement alourdi. De plus, si l'on s'intéresse à des régimes d'intensité plus élevées, cette méthode échoue à décrire le plateau présent dans le spectre ATI (cf. §1.2.1). Ceci s'explique par le fait que les termes d'ordre supérieurs ne deviennent plus négligeables devant le premier. Enfin, l'enveloppe temporelle de l'impulsion, particulièrement importante pour les temps courts du fait de la largeur spectrale, permet une dynamique atomique beaucoup plus complexe que dans le cas de champs monochromatiques. Cet aspect ne peut pas être considéré simplement dans la TPOB indépendante du temps et on doit alors résoudre l'ESDT (cf. §1.3.1).

Les méthodes fondées sur l'approximation des champs forts (SFA)

L'idée fondamentale régissant ces méthodes suppose qu'à des intensités fortes, le champ Coulombien créé par le noyau peut être vu comme une perturbation en regard du champ électrique du laser. Historiquement, la théorie de L.V. Keldysh [13] propose des expressions de taux de transition calculés entre un état initial lié et celui d'un électron libre oscillant dans le champ laser : un état non perturbé de Volkov [12] décrit par

$$\mathcal{V}(\vec{r}, t) = \exp \left(i\vec{p}(t) \cdot \vec{r} - \frac{i}{2} \int dt' p^2(t') \right) \quad (1.37)$$

où l'on définit le moment canonique par $\vec{p}(t) = \vec{k} + \vec{A}(t)$. Deux cas limites sont envisagés en fonction d'un paramètre γ dit « paramètre de Keldysh »

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (1.38)$$

défini comme la racine carrée du rapport du potentiel d'ionisation (I_p) à l'énergie pondéromotrice (U_p) d'une impulsion oscillante d'amplitude constante. Ils correspondent à deux régimes d'ionisation, l'un par effet tunnel ou suppression de barrière quand $\gamma \ll 1$, et l'autre par ionisation multiphotonique quand $\gamma \gg 1$. Ceci peut être compris d'un point de vue classique dans le cadre d'impulsions longues par une analyse du potentiel global {atome+champ}. Dans le cas où l'intensité est suffisamment faible ($\gamma \gg 1$), l'ionisation ne se fait que par absorption multiphotonique (cf. FIG. 1.7a)). Dans le cas contraire, l'abaissement de la barrière de potentiel atomique est suffisante pour que l'électron puisse s'échapper par effet tunnel (cf. FIG. 1.7b)). Si l'intensité abaisse fortement la barrière au point que l'électron n'y soit plus soumis, il

est alors éjecté par suppression de barrière (« Barrier Suppression Ionization » ou BSI cf. FIG. 1.7c)).

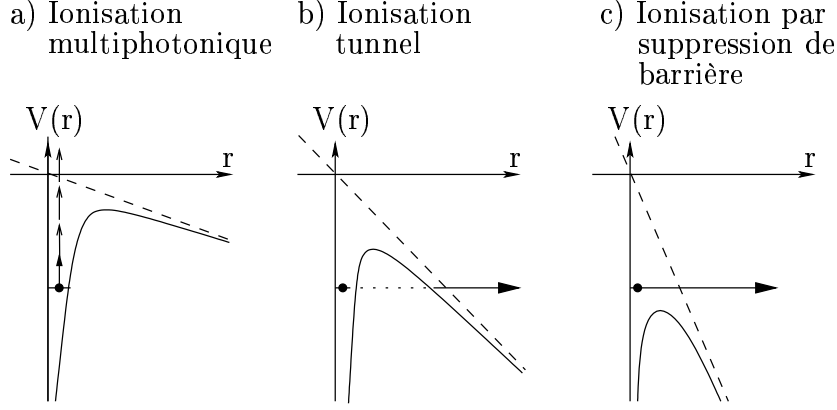


FIG. 1.7 – Représentation schématique des différents régimes d'ionisation.

Dans le cas limite $\gamma \ll 1$ le taux d'ionisation s'écrit [13]

$$W = \frac{(6\pi)^{1/2}}{4} I_p \left(\frac{E_0}{I_p^{3/2}} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E_0} \right) \quad (1.39)$$

où E_0 est l'amplitude crête du champ électrique de l'impulsion laser. Toutefois, dans l'autre cas limite $\gamma \gg 1$ le taux d'ionisation multiphotonique est souvent mis en défaut, en particulier dans l'application aux semi-conducteurs [109, 110]. Ceci est dû à l'approximation des petites fréquences qui intervient très tôt dans le travail de Keldysh. Dans ce cas, la TPOB s'avère plus adaptée [15]. Ainsi, pour s'affranchir de cette contrainte, et permettre des calculs plus aisés à résoudre analytiquement, F.H.M. Faisal et H. Reiss apportent l'idée de développer les calculs dans la jauge des vitesses [14, 15] (cf. §1.4.2) et arrivent finalement à un taux d'ionisation du type

$$W = 32\omega n_b^{5/2} \sum_{n=N_0}^{\infty} \frac{(n - n_{osc} - n_b)^{1/2}}{(n - n_{osc})^2} \int_0^1 d\mu J_n^2 \left(n_f, -\frac{n_{osc}}{2} \right) \quad (1.40)$$

où ω est la pulsation laser, $J_n(u, v)$ sont les fonctions de Bessel généralisées, n_{osc} est le quotient de l'énergie pondéromotrice sur l'énergie du photon $\frac{U_p}{\omega}$, n_b celui du potentiel d'ionisation sur l'énergie du photon $\frac{I_p}{\omega}$, N_0 est le plus

petit entier supérieur à $n_b + n_{osc}$, $n_f = [8n_{osc}(n - n_{osc} - n_b)]^{1/2}\mu$ et $\mu = \cos \theta$. Cependant, l'une des limitations essentielles de cette théorie est l'utilisation d'un état initial de type hydrogénoïde pour modéliser les atomes plus complexes. Les résultats sont très bons dans le cas de l'hélium mais présentent un décalage pour les autres gaz rares [111]. De plus, l'interaction Coulombienne avec l'ion résiduel, ignorée dans la plupart des modèles, est également une limite forte de cette théorie. Elle échoue par exemple à prédire un nombre suffisant d'électrons de haute énergie dans le cas d'ionisation par des impulsions laser polarisées linéairement [112]. Afin de la prendre en compte, A. Szöke propose une modification à la théorie Keldysh, Faisal, Reiss (KFR) [113]. L'idée est de superposer un potentiel constant (équivalent au potentiel d'ionisation) et le potentiel oscillant du champ laser dans l'état de Volkov final. Le résultat est sensiblement similaire à celui de la théorie KFR

$$W = 32\omega n_b^{5/2} \sum_{n=N_0}^{\infty} \frac{n^2(n - n_{osc} - n_b)}{(n - n_{osc})^{1/2}(n + n_b - n_{osc})^4} \int_0^1 d\mu J_n^2\left(n_f, -\frac{n_{osc}}{2}\right) \quad (1.41)$$

où $n_f = [8n_{osc}(n - n_{osc})]^{1/2}\mu$. Bien que ce calcul soit très bon pour de faibles intensités, il l'est nettement moins pour les intensités élevées. Comme expliqué dans [114] le potentiel constant ne correspond pas au potentiel Coulombien quand l'oscillation des électrons dans le champ est de l'ordre où plus grand que le rayon atomique. Ce point a été traité dans [115] où l'introduction des corrections Coulombiennes se fait via un facteur exponentiel dépendant du temps, par une transformation du repère de Kramers-Henneberger (cf. §1.4.2) vers le repère du laboratoire. En outre, il est montré que l'approximation du potentiel plus précise que [116] donne des taux d'ionisations plus réalistes en particulier pour les basses intensités. Une autre manière de corriger les probabilités et les densités de probabilités d'ionisation par effet tunnel calculées par la théorie de Keldysh est présenté dans [117]. L'amélioration concerne la prise en compte de l'interaction Coulombienne lors de l'effet tunnel et lors du déplacement de l'électron dans le continuum de l'hélium induits par des impulsions laser très brèves. Les résultats sont alors en meilleur accord avec des calculs *ab initio*.

La théorie ADK

Les calculs de taux d'ionisation par M.V. Ammosov, N.B. Delone and V.P. Krainov [16] sont une extension du travail déjà entamé par A.M. Perelomov, V.S. Popov et M.V. Terent'ev [118]. Ces derniers introduisirent une dépendance des niveaux atomiques et des oscillations du champ électrique

dans l'expression du taux d'ionisation par champ électrique statique en trois dimensions donné par la formule [119]

$$W = 4 \frac{2I_p}{E_0} \exp \left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E_0} \right) \quad (1.42)$$

Cette expression est dominée par le facteur exponentiel que l'on retrouve dans le modèle de Keldysh. Perelomov *et al.* insérèrent la structure atomique par le biais des nombres quantiques principal n^* , angulaire ℓ et magnétique m . Cependant, Ammosov *et al.* introduisirent des coefficients $C_{n^*\ell}$ et $f(\ell, m)$ intervenant simplement dans le calcul du taux d'ionisation

$$C_{n^*\ell} = \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{n^*} \frac{1}{(2\pi n^*)^{1/2}} \quad \ell \ll n^* \quad (1.43)$$

et

$$f(\ell, m) = \frac{(2\ell + 1)(\ell + |m|)!}{2^{|m|} |m|! (\ell - |m|)!} \quad (1.44)$$

le taux d'ionisation s'écrivant sous une forme plus facile à calculer

$$W = C_{n^*\ell}^2 f(\ell, m) I_p \left(\frac{3E(t)}{\pi(2I_p)^{3/2}} \right)^{1/2} \left[\frac{2}{E(t)} (2I_p)^{3/2} \right]^{2n^* - |m| - 1} \times \exp \left(-\frac{2}{3E(t)} (2I_p)^{3/2} \right) \quad (1.45)$$

Il faut néanmoins souligner que ce taux n'est valable que pour les conditions suivantes : $n^* \gg 1$, $\omega \ll I_p$ et $E_0 \ll 1$ *u.a.* ce qui signifie pour des champs d'énergie de photons peu élevée et d'intensité permettent l'ionisation par effet tunnel mais pas par BSI. En effet, dans ce dernier cas, et même pour un atome simple comme l'hydrogène, aucune des théories précitées ne calcule correctement les taux d'ionisation en conditions de champ intense et bref [17]. Ces théories d'ionisation par effet tunnel ne peuvent donc pas être extrapolées simplement dans le régime BSI. En particulier, l'hypothèse d'un état initial évoluant au cours de l'interaction comme s'il était non perturbé doit être remise en question. De plus, les traitements visant à décrire cette dynamique doivent prendre en compte les éventuelles résonances par les états intermédiaires. La présence de ces dernières à pour effet de considérablement augmenter les taux d'ionisation en particulier dans le cas de l'hélium et ce même à des intensités faibles [120]. Il apparaît par exemple que le taux calculé par ADK sous-estime considérablement celui calculé par une méthode plus élaborée fondée sur la R-matrice du fait de sa décroissance exponentielle au

faibles intensités ; les autres résultats présentant un comportement en loi de puissance. Par ailleurs, un autre questionnement est soulevé par [19] à propos de l'hypothèse d'absence de champ Coulombien en regard des intensités laser utilisées dans les théories SFA. Il s'avère que le potentiel Coulombien joue un rôle crucial dans la production d'électrons de faible énergie lors de l'ionisation de l'hydrogène. Caractéristique non reproduite par la plupart des méthodes fondées sur SFA.

En définitive, l'utilisation des méthodes approchées est soumise à de nombreuses restrictions non seulement au niveau de l'intensité employée mais aussi des énergies de photon. Il faut donc toujours garder présent à l'esprit que ces méthodes fournissent des informations qualitatives et quantitatives dans un domaine relativement réduit [121].

1.4 Cadre et positionnement de notre travail

Le travail que nous avons développé repose sur une description des interactions multiphotoniques entre un champ laser VUV bref et intense et un atome, en utilisant un type d'états particuliers dénommés états de « Coulomb-Volkov ». Il fait suite à celui déjà entamé par G. Duchateau [122] auquel nous ferons abondamment référence. Commençons par exposer formellement le cadre de notre travail et en particulier les approximations sur lesquelles nous nous sommes appuyés.

1.4.1 Structure atomique, Hamiltonien et approximations

Comme nous nous sommes intéressés à des systèmes monoélectronique (hydrogène) et diélectronique (hélium), nous allons présenter d'un point de vue général les considérations sur la structure atomique. Ceci afin d'aboutir aux exemples particuliers qui nous intéressent. Un atome polyélectronique à N électrons est décrit à chaque instant dans l'approximation du centre de masse confondu avec le noyau de charge Z , par sa fonction d'onde $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2 \cdots \vec{r}_N, t)$. Chaque \vec{r}_i est le rayon vecteur de chaque électron. La FIG. 1.8 ci-après représente le cas simple de l'hélium. L'évolution de la fonction d'onde est régie par l'équation de Schrödinger

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2 \cdots \vec{r}_N, t) = \mathcal{H}\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2 \cdots \vec{r}_N, t) \quad (1.46)$$

où \mathcal{H} est le Hamiltonien total du système. Ce dernier peut se décomposer comme suit

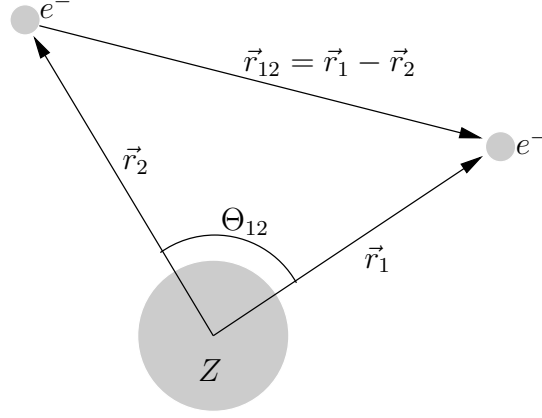


FIG. 1.8 – Représentation schématique d'un atome d'hélium

$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^N \left[h_i + \mathcal{D}_{i,\vec{E}}(t) \right] + \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \mathcal{I}_{i,j} \quad (1.47)$$

où le premier terme du membre de droite représente le Hamiltonien du système atomique pour des électrons en interaction seulement avec le noyau et le champ laser dépendant du temps, le second terme résultant de l'interaction Coulombienne entre les électrons eux-mêmes. Nous reviendrons longuement sur ce point lors de l'étude sur l'hélium pour voir de quelle manière nous pouvons contourner ou approcher au mieux cette difficulté. Posons $\mathcal{H}_0 = \sum_{i=1}^N h_i + \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \mathcal{I}_{i,j}$ le Hamiltonien « libre » et $V(t) = \sum_{i=1}^N \mathcal{D}_{i,\vec{E}}(t)$ l'ensemble des interactions {électrons+champ}. Ainsi, le Hamiltonien total devient

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V(t) \quad (1.48)$$

et réduisons notre système à un atome diélectronique

$$\begin{cases} \mathcal{H}_0 = h_1 + h_2 + \mathcal{I}_{1,2} \\ V(t) = \mathcal{D}_{1,\vec{E}}(t) + \mathcal{D}_{2,\vec{E}}(t) \\ i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = [\mathcal{H}_0 + V(t)] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \end{cases} \quad (1.49)$$

où chaque Hamiltonien électronique individuel h_i est composé d'un terme

d'énergie cinétique et d'un terme d'énergie potentielle représentant l'interaction Coulombienne avec le noyau de charge Z_i

$$h_i = -\frac{\nabla_i}{2} - \frac{Z_i}{r_i} \quad (1.50)$$

Avant de pousser plus en avant l'analyse d'un tel système, il est d'ores et déjà intéressant de considérer un certain nombre d'hypothèses qui vont sensiblement simplifier le problème

HYPOTHÈSE 1

Le déplacement du noyau est supposé négligeable, sa masse étant considérée comme infinie en regard de celle des électrons.

Il faut toutefois relativiser cette hypothèse dès que l'utilisation de champs très intenses est à considérer.

HYPOTHÈSE 2

Les intensités et les énergies de photon auxquelles nous serons confrontés nous permettent de négliger tout effet relativiste.

Ceux-ci étant à considérer à partir de $I = 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ [123].

HYPOTHÈSE 3

Tous les couplages de type spin-orbite seront considérés comme négligeables.

HYPOTHÈSE 4

Aucun champ magnétique dû à la force de Lorentz n'est pris en compte dans les traitements ultérieurs.

Encore une fois, cette affirmation devient contestable pour des intensités très élevées (au-delà de $I = 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ [123]).

HYPOTHÈSE 5

L'interaction laser-atome sera décrite dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique.

Cette dernière hypothèse concerne le champ électrique du laser. En effet, les longueurs d'ondes (VUV) auxquelles nous allons travailler sont considérablement plus grandes que la dimension même de l'atome irradié. Dans ces conditions, il est possible d'utiliser l'approximation dipolaire électrique. Ceci reste valable tant que $\lambda \gg a_0$, ce qui signifie ne pas utiliser de rayonnement γ . En pratique, l'atome ne perçoit pas les variations spatiales du champ mais seulement ses variations temporelles.

En tenant compte de toutes ces hypothèses, mais aussi en accord avec les caractéristiques des lasers ou des rayonnements qu'il est possible de produire actuellement (harmoniques ou LEL), nous nous limiterons à des intensités maximum de l'ordre de $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ voire moins pour la plupart des cas, et de longueur d'onde dans le domaine VUV. L'expression du terme d'interaction dipolaire dépend du choix de la jauge et est décrit plus en détail dans la section suivante.

1.4.2 Les différentes jauges

Lorsque l'on choisit un ensemble particulier de potentiels pour décrire un champ électromagnétique, on dit que l'on effectue un choix de jauge. Une infinité de jauges différentes peuvent être utilisées pour un même champ et lorsque l'on passe de l'une à l'autre, on pratique un changement de jauge sachant qu'elles possèdent la propriété d'invariance.

La jauge des vitesses

C'est celle qui est issue naturellement lorsque l'on écrit le Hamiltonien classique du système en interaction avec le champ électromagnétique à la limite non relativiste, puis que l'on quantifie chacune des variables de Lagrange et que l'on se place d'emblée dans la jauge de Coulomb où

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A}(t) = 0 \implies \vec{E}(t) = -\frac{\partial \vec{A}(t)}{\partial t} \quad (1.51)$$

De plus, dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique qui consiste à ne retenir que l'ordre le plus bas du développement multipolaire en puissances de \vec{r} du potentiel vecteur, $\vec{A}(t)^2$ ne contribue pas aux transitions et déplace simplement les énergies. Il peut alors être négligé. L'équation de Schrödinger devient en jauge des vitesses

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi_V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \left[\mathcal{H}_0 + \vec{A}(t) \cdot (\vec{\nabla}_1 + \vec{\nabla}_2) \right] \Psi_V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (1.52)$$

Le terme d'interaction est donc $\vec{A}(t) \cdot \vec{\nabla}$ qui donne son nom à la jauge.

La jauge des longueurs

Si l'on utilise l'approximation dipolaire électrique puis la transformation unitaire de Göppert-Mayer définie comme il suit

$$T_{V \rightarrow L} = \exp \left(-i \vec{A}(t) \cdot \sum_i \vec{r}_i \right) \quad (1.53)$$

Dans ce cas, chaque terme d'interaction {dipôle+champ} s'écrit

$$\mathcal{D}_{i,\vec{E}}(t) = -\vec{d}_i \cdot \vec{E}(t) \quad (1.54)$$

où l'on a $\vec{d}_i = q_e \vec{r}_i$. Il faut cependant préciser que c'est toujours l'interaction du dipôle formé par l'électron et le noyau atomique qui interagit avec la champ lumineux. Mais par abus de langage, on parle de l'électron. Dans ces conditions, l'équation de Schrödinger se réécrit

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_L(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \left[\mathcal{H}_0 + (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \vec{E}(t) \right] \Psi_L(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (1.55)$$

C'est la jauge dans laquelle nous allons travailler. En effet, les états de Coulomb-Volkov que nous allons utiliser ne s'expriment simplement que dans cette jauge (cf. §2.3.5).

La jauge de Kramers-Henneberger

Elle consiste à se placer dans le repère de l'électron soumis uniquement au champ électrique du laser (dit repère de Kramers-Henneberger) [124]. En appliquant une translation spatiale caractérisée par le vecteur $\vec{\alpha}(t) = \int dt' \vec{A}(t')$ défini classiquement comme le déplacement de l'électron dans le champ laser, la transformation de Kramers permet de passer du repère du laboratoire au repère accéléré de Kramers par

$$T_{V \rightarrow A} = \exp \left(-i \sum_i \vec{\nabla}_i \cdot \vec{\alpha}(t) \right) \quad (1.56)$$

l'ESDT devient

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_A(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \left[-\frac{\nabla_1^2}{2} - \frac{Z_1}{\|\vec{r}_1 + \vec{\alpha}(t)\|} - \frac{\nabla_2^2}{2} - \frac{Z_2}{\|\vec{r}_2 + \vec{\alpha}(t)\|} \right] \Psi_A(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (1.57)$$

Cette jauge est parfois dénommée jauge des accélérations.

1.4.3 Le modèle semi-classique de l'impulsion laser

La modélisation de l'impulsion laser est un choix délicat. Nous nous sommes intéressés au rayonnement dans le domaine VUV et de l'ordre de quelques femtosecondes ce qui impose de prendre en compte la variation rapide de l'enveloppe du champ. En vertu des considérations déjà énoncées sur le champ laser, nous pouvons d'emblée modéliser le champ électrique de manière classique par

$$\vec{E}(t) = E_0 \sin(\omega t + \varphi) f(t) \vec{\lambda} \quad (1.58)$$

où E_0 représente l'amplitude maximum atteinte par ce champ, φ est sa phase à l'origine, $\vec{\lambda}$ est le vecteur unitaire dirigé dans la direction de polarisation et la fonction $f(t)$ définit le profil temporel (enveloppe) de l'impulsion. Généralement, $f(t)$ est une gaussienne car les modes laser présentent ce type de profil. Mais nous préférons utiliser une enveloppe en sinus carré qui présente plusieurs avantages. Tout d'abord, les expressions du potentiel, d'intégrales du potentiel que l'on rencontrera dans les développements ultérieurs, sont analytiques et de forme assez simple. Elle possède en outre une extension finie τ qui la caractérise complètement. τ est donc la durée totale de l'impulsion pied à pied, à différencier du τ pour une impulsion gaussienne définissant sa largeur à mi-hauteur. En effet, cette dernière est d'extension infinie ce qui rend de fait les calculs délicats. De plus, l'utilisation d'une enveloppe sinus carré permet une plus grande maniabilité dans la description de champs plus complexes (par exemple la superposition de deux champs pour l'étude de bandes-latérales ou « side-band » ou encore une impulsion présentant un piedestal pour l'étude de la dynamique du « pré-pulse ») car ils pourront être décomposés très facilement en série de Fourier et aisément traités dans les calculs. Dans les cas que nous étudierons, nous avons donc très simplement modélisé le champ laser par

$$\vec{E}(t) = E_0 \sin(\omega t + \varphi) \sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau}\right) \vec{\lambda} \quad t \in [0, \tau] \quad (1.59)$$

et la durée de l'impulsion est relié à la pulsation par $\tau = \frac{2\pi N_{cycles}}{\omega}$ où N_{cycles} est le nombre de cycles optiques. Nous utilisons très souvent des impulsions symétriques ce qui signifie que le maximum de l'enveloppe coïncide avec un maximum de la porteuse. Ceci impose le choix d'une phase $\varphi = \frac{\omega\tau - \pi}{2}$. Un exemple type de profil est représenté par la FIG. 1.9 suivante, correspondant à une intensité crête de $I_0 = 10^{10} \text{ W.cm}^{-2}$, une durée de $\tau = 2,78 \text{ fs}$ et de 30 cycles optiques ce qui définit une impulsion UV de 45 eV.

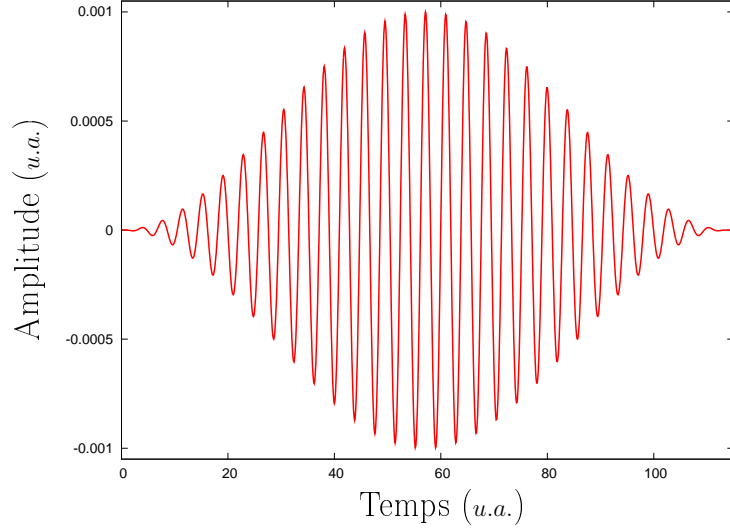


FIG. 1.9 – Profil temporel du champ électrique d'une impulsion laser avec une enveloppe \sin^2 d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ d'amplitude crête $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ et de $N_{cycles} = 30$.

Comme nous l'avons souligné, le cadre des impulsions brèves implique que l'énergie de chaque photon absorbé est assortie d'une largeur spectrale, pouvant favoriser l'accès à certains états atomiques. Dès lors, toute une dynamique mettant en jeu des photons situés sur les ailes de la distribution spectrale du laser est ouverte. Ceci est illustré par la FIG. 1.10 suivante où la transformée de Fourier du champ précédemment décrit est tracée. Bien que le domaine spectral soit centré autour de $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, on peut estimer une largeur par la formule $\Delta\omega = \frac{2\pi}{\tau/2}$ définissant un intervalle entre $1,54 \text{ u.a.}$ et $1,76 \text{ u.a.}$ Ainsi, les photons dont l'énergie est située dans cette largeur interviendront de manière prépondérante dans la dynamique électronique, et ceux dont l'énergie est située en dehors, c'est-à-dire sur les ailes de la distribution spectrale, interviendront dans une moindre mesure. L'effet de cette largeur est d'autant plus important là où la densité d'états liés devient importante, en particulier près du seuil d'ionisation où la contribution de ces états à l'ionisation peut devenir significative. C'est un point important sur lequel nous reviendrons par la suite. Nous verrons par ailleurs que cette largeur est propre à ce profil en \sin^2 et qu'un autre type d'enveloppe n'induirait pas forcément le même type de dynamique. En dernier lieu, il faut garder à l'esprit que les résultats que l'on va donner devront être interprétés pour une intensité précise correspondant à un événement microscopique local du

profil. En effet, il faut distinguer le point de vue macroscopique où le profil spatial de l'impulsion présente un gradient, et microscopique où ce gradient n'est plus à prendre en compte.

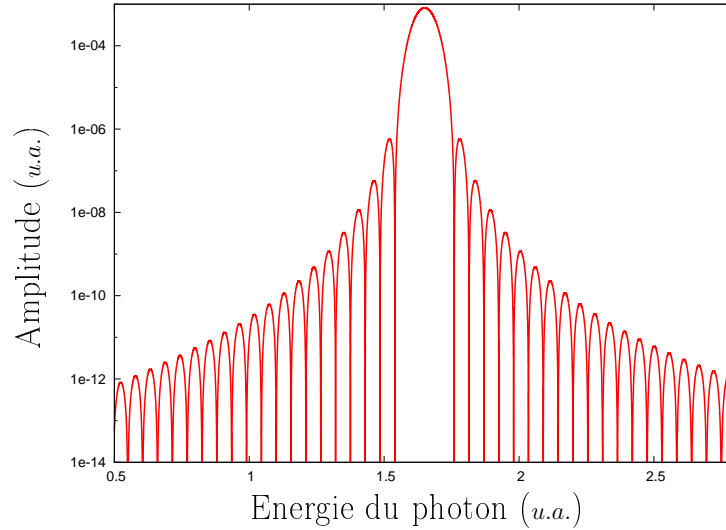


FIG. 1.10 – Transformée de Fourier d'une impulsion laser avec une enveloppe \sin^2 d'énergie $\omega = 1,65$ u.a. d'amplitude crête $E_0 = 10^{-3}$ u.a. et de $N_{cycles} = 30$.

1.4.4 Positionnement de notre travail

La plupart des mécanismes d'éjection d'électrons rapides sous l'impulsion de champs intenses, basses fréquences peuvent être décrits dans le cadre de l'approximation SFA. Celle-ci repose sur une description générale exacte d'un électron se déplaçant dans un champ électromagnétique, « état de Volkov », les modèles semi-classiques qui lui sont associés rendent assez bien compte de ces processus (cf. §1.2.2). Cependant, une question centrale apparaît : comment l'éjection d'électrons lents (c'est-à-dire emportant une faible énergie cinétique) peut-elle être comprise dans ce modèle ? Au-delà même de cette simple question transparaît le rôle crucial du potentiel Coulombien à longue portée. Il a été démontré que les deux sont fortement liés et que c'est précisément un point sur lequel une méthode SFA standard échoue [19, 117]. Et ce, malgré de nombreuses variantes proposées pour la prise en compte du potentiel Coulombien [125, 126, 127], chacune d'entre elles reposant sur des approximations.

Parallèlement, une méthode spécifique s'est distinguée par la prise en compte de l'interaction Coulombienne via les états exacts de la structure atomique et a mené aux fonctions d'onde de type « Coulomb-Volkov » telles qu'elles sont exploitées dans ce travail et s'écrivant sous la forme

$$\chi^{CV}(\vec{r}, t) = \Phi(\vec{r}, t)\mathcal{L}(\vec{r}, t) \quad (1.60)$$

où $\Phi(\vec{r}, t)$ est la fonction d'onde d'un état atomique lié ou non et $\mathcal{L}(\vec{r}, t)$ une phase analogue à un état de Volkov. Dans ce cas, l'interaction Coulombienne entre le noyau et l'électron est contenue dans $\Phi(\vec{r}, t)$ et l'interaction entre le dipôle électronique et le champ laser dans $\mathcal{L}(\vec{r}, t)$. Historiquement, les fonctions Coulomb-Volkov ont déjà été largement exploitées dans le domaine IR. Les premiers travaux sont ceux de M. Jain et N. Tzoar [20] pour le calcul de la diffusion Compton de rayons X par les électrons d'un atome puis par un gaz d'électrons en présence d'un champ laser. Ils montrent que de petites variations dans le moment électronique peuvent avoir une influence très importante sur la section efficace de diffusion. Puis l'utilisation de ces mêmes fonctions pour le calcul de spectres en énergie d'électrons ATI de l'hydrogène avec un champ oscillant d'amplitude constante, de polarisation linéaire [128] reproduit qualitativement les résultats expérimentaux en particulier le phénomène de suppression des pics. Son extension à la polarisation elliptique a aussi été développé dans [129], qui met en évidence l'impact des caractéristiques du laser sur l'ATI. Enfin, le calcul de distributions angulaires sous les mêmes conditions présente une modification importante des profils d'émission en fonction de l'ellipticité [130]. Dans un autre domaine, elles furent appliquées à la description de collisions induites par laser en fonction de l'angle d'éjection de l'électron [131, 132], puis pour le calcul de la distribution angulaires lors de processus $(e^-, 2e^-)$ assistés par laser [133, 134, 135]. Puis, l'introduction de ce type de fonctions d'onde dans une théorie KFR ont permis de mieux prédire la production d'électrons d'énergie élevé dans le spectre ATI [136] (effet induit par l'interaction Coulombienne), mais pas le plateau caractéristique du spectre ATI. Ce dernier point a été traité avec succès dans [137] par le développement au deuxième ordre de la matrice S [18]. L'un des derniers travaux concernant cette méthode est celui de L.P. Presnyakov [138] dont l'originalité repose sur la représentation de la fonction d'onde interagissant avec les champs électriques du noyau et du laser. Cependant, sa variante adaptée pour les collisions par ions lourds et fondée sur l'approximation de variation lente du champ Coulombien, se révèle inadéquate pour l'ionisation par des champs laser [122]. De plus, l'apparition d'un point singulier rend la résolution numérique ardue.

Récemment, des résultats particulièrement prometteurs ont été obtenus

par G. Duchateau en développant une amplitude de transition dans le cadre de l'approximation soudaine c'est-à-dire en supposant que l'électron n'a pas le temps de s'adapter au champ Coulombien pendant la durée de l'interaction avec la champ laser. Cette méthode dénommée CV1, prédit les spectres électroniques énergétiques lors de l'ionisation de l'hydrogène par des champs dont la durée est limitée à la moitié de la période orbitale [21], mais aussi lors de l'ionisation de métaux alcalins [139]. Deux avantages essentiels de cette description dans sa formulation actuelle résident dans la caractérisation des termes d'interaction Coulombienne d'une part et d'interaction électromagnétique d'autre part. Mais également un comportement asymptotique correct dans les cas où l'une ou l'autre des interactions s'annule. Ce dernier point lui confère un atout majeur vis-à-vis des autres descriptions. Cependant, elle repose sur deux conditions : tout effet dynamique venant de l'interaction entre l'électron éjecté et le noyau est négligeable en comparaison de l'interaction laser-atome et le nombre d'oscillations du champ laser ne doit pas excéder deux unités. Pour accéder à l'information sur la dynamique au cours de l'interaction et étendre le champ d'étude, un développement CV2 a été mis en place. Cette approche dépendante du temps, est exactement celle que nous avons adoptée car elle permet de prendre en compte l'évolution temporelle du champ électrique du laser et se révèle parfaitement adaptée aux processus induits par des champs ultra-brefs, en particulier à l'ionisation par des impulsions XUV brèves et reproduit parfaitement les spectres ATI de l'hydrogène dans ces conditions [22]. Il faut néanmoins ajouter que ces résultats sont également assujettis à deux contraintes fortes : l'énergie du photon laser incident doit être supérieure au potentiel d'ionisation de l'atome irradié, et les probabilités d'ionisation doivent rester inférieures à 20%. En pratique, cela restreint l'utilisation à des impulsions VUV en conditions de perturbation, c'est-à-dire pour des intensités laser n'excédant pas $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et d'une durée comprise entre 0,5 et 2 fs [122].

C'est donc dans ce contexte que nous plaçons notre travail, à savoir une théorie multiphotonique éprouvée dans un domaine défini. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes orientés vers trois axes de recherche constituant la colonne vertébrale de ce manuscrit. Tout d'abord, l'extension de la méthode Coulomb-Volkov hors conditions de perturbation, ce qui sous-entend de prendre en compte le dépeuplement important de l'état fondamental au cours de l'interaction. Initialement, une analyse de l'atome d'hydrogène en conditions de saturation a été menée. Nous verrons comment nous pouvons réintroduire ce dépeuplement à partir des coefficients calculés par un système d'équations couplées réduites (ECR). Dans un deuxième temps, la diminution de l'énergie des photon du laser afin de pouvoir se rapprocher de celle des photons utilisés expérimentalement, très inférieures au potentiel d'ionisa-

tion. Dans ce cas, l'étude des éventuelles résonances avec les états atomiques intermédiaires liés rendus accessibles par la largeur spectrale du laser devient prépondérante. Nous verrons alors comment dériver une méthode Coulomb-Volkov dépendante du temps afin de décrire l'excitation multiphotonique des premiers états liés de l'hydrogène. Enfin, nous nous sommes orientés sur l'étude de l'hélium et le cas de la double photoionisation (DPI) à un et deux photons « directe » (par opposition à la DPI « séquentielle » ne pouvant être décrite). Il s'agit de s'intéresser au problème théorique récurrent des trois corps en interaction et de voir dans quelle mesure nous pouvons extraire des résultats sur trois facettes de cette description : la section efficace totale et les sections efficaces différentielles en angle et en énergie.

1.5 Conclusion

Après des considérations très générales sur l'interaction entre une impulsion laser et la matière à l'échelle atomique et une revue des approches existantes, ce chapitre nous a permis de bien délimiter le contexte tant expérimental que théorique dans lequel nous plaçons le traitement que nous développons. Il est par ailleurs absolument nécessaire de cerner les limitations intrinsèques d'une approche de type Coulomb-Volkov car elles permettent de ne pas rentrer en compétition avec d'autres méthodes plus performantes que la notre. Le deuxième chapitre est consacré au développement des amplitudes de transitions dépendantes du temps que l'on dérivera par la suite pour l'étude de l'hydrogène et de l'hélium. Comme nous le verrons, ce formalisme a entre autres l'avantage de mettre très facilement en lumière les différents termes physiques contribuant à la dynamique, ce qui lui confère une grande lisibilité.

L'approche Coulomb-Volkov

2.1 Introduction

LE but de ce chapitre est de proposer et développer le formalisme des amplitudes de transitions qui ont été utilisées pour l'étude de processus multiphotoniques atomiques tout au long de cette thèse. Nous allons regarder comment nous pouvons aboutir aux expressions générales des amplitudes de transition, que nous allons ensuite appliquer à l'étude de l'hydrogène et de l'hélium. Comme nous l'avons déjà souligné, l'approche Coulomb-Volkov développée dans l'approximation soudaine (dénommée CV1) donne de très bonnes prédictions lorsque tout effet dynamique issu de l'interaction Coulombienne de l'électron avec le noyau est négligeable en comparaison de celle de l'atome avec le champ laser [122]. Cependant, la durée de l'impulsion laser doit rester très brève par rapport à la période orbitale de l'électron et ne pas dépasser 1,7 oscillations [122]. A ces échelles de temps, l'énergie même du photon mis en jeu est difficile à définir et il s'agit d'un cas limite où le caractère quantique de l'interaction {électron-noyau} disparaît au profit d'une description classique de la dynamique (cf. [122] chapitre 4). Cette approche n'est donc pas capable de décrire l'absorption de photons par l'atome. Ainsi, une autre approche Coulomb-Volkov dépendante du temps (CV2) a été mise en place pour prendre en compte les oscillations du champ laser mais également la variation rapide de son enveloppe quand la durée de l'impulsion est brève. Ceci permet d'apporter des informations sur la dynamique et l'évolution du système tout au long de l'interaction. Elle s'est révélée pertinente pour l'ATI³ de l'hydrogène induite par des champs laser femtoseconde dans le domaine XUV, et a ainsi démontré le crédit que l'on pouvait lui accorder

³Rappel : Above Threshold Ionization

[22]. Dans le détail, il s'agit d'une méthode analytique approchée fondée sur l'utilisation des états de Coulomb-Volkov comme états du système à chaque instant. Ceux-ci présentent des avantages qui justifient leur emploi : nous montrerons que pour un atome hydrogénoïde, ils sont construits de manière à présenter un comportement asymptotique correct dans les deux cas limites où le champ Coulombien s'annule et où le champ laser s'annule. Nous retrouverons dans chacun de ces cas l'état de Volkov ou les états propres de l'atome non perturbé. Également, nous rappellerons comment leur introduction dans l'amplitude de transition se développe à tous les ordres de transition multiphotonique directe [122]. En outre, cette méthode présente une très grande lisibilité mais également la possibilité de paramétrer complètement le système atomique (charges nucléaires) mais aussi le champ laser (profil temporel). De plus, le développement récent d'une technique appropriée d'intégration sur le temps améliore considérablement la rapidité et la précision des calculs sur une large gamme de durée d'impulsions, allant de quelques centaines d'attosecondes à plusieurs centaines de femtosecondes [140]. Enfin, son caractère analytique nous permet l'accès direct à de nombreuses informations comme les distributions en angles et en énergies ou les sections efficaces totales de la dynamique étudiée. Comme nous le verrons, elle a aussi la particularité de pouvoir être facilement étendue vers des systèmes plus complexes.

2.2 Formalisme des amplitudes de transition CV2

Dans ce paragraphe, nous allons succinctement rappeler le développement général des amplitudes de transition CV2 telles qu'elles ont été exploitées dans [122]. La démarche est sensiblement analogue à celle exposée dans le paragraphe sur les équations couplées (cf. §1.3.2) et débutons par l'expression exacte

$$T_{fi} = \langle \Psi_f^-(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \quad (2.1)$$

où $\Psi_i^+(\vec{r}, t)$ et $\Psi_f^-(\vec{r}, t)$, respectivement onde « entrante » initiale et « sortante » finale sont solutions exactes de l'ESDT

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) = \mathcal{H} \Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) = [\mathcal{H}_0 + V(t)] \Psi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) \quad (2.2)$$

et soumises aux conditions asymptotiques suivantes

$$\begin{cases} \lim_{t \rightarrow -\infty} \Psi_i^+(\vec{r}, t) = \Phi_i(\vec{r}, t) \\ \lim_{t \rightarrow +\infty} \Psi_f^-(\vec{r}, t) = \Phi_f(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.3)$$

avec $\Phi_{i,f}(\vec{r}, t)$ solutions exactes de l'équation « non perturbée »

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) = \mathcal{H}_0 \Phi_{i,f}(t) = \varepsilon_{i,f} \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \quad (2.4)$$

Il est possible de définir, en conditions de perturbation, deux formes limites de l'amplitude de transition, qualifiées respectivement de « post » et « prior » et labélisées par l'exposant + ou -

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \Psi_i^+(t) \rangle = \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \\ T_{fi}^- = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \Psi_i^+(t) \rangle = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \end{cases} \quad (2.5)$$

et ajoutons à chacune des formes précédentes un terme identiquement nul du fait de l'orthogonalité des fonctions d'onde par l'intermédiaire de l'autre limite

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle - \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \\ T_{fi}^- = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle - \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \end{cases} \quad (2.6)$$

que l'on peut réécrire sous la forme intégrale

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \frac{\partial}{\partial t} \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \\ T_{fi}^- = \int_{+\infty}^{-\infty} dt \frac{\partial}{\partial t} \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \end{cases} \quad (2.7)$$

En utilisant (2.2) et (2.4) les expressions précédentes deviennent

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \left[\langle \Phi_f(t) | \mathcal{H}_0 | \Psi_i^+(t) \rangle - \langle \Phi_f(t) | \mathcal{H}_0 + V(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \right] \\ T_{fi}^- = i \int_{+\infty}^{-\infty} dt \left[\langle \Psi_f^-(t) | \mathcal{H}_0 + V(t) | \Phi_i(t) \rangle - \langle \Psi_f^-(t) | \mathcal{H}_0 | \Phi_i(t) \rangle \right] \end{cases} \quad (2.8)$$

Puis, en posant pour une impulsion laser $\lim_{t \rightarrow -\infty} t = 0$ et $\lim_{t \rightarrow +\infty} t = \tau$

$$\begin{cases} T_{fi}^+ = -i \int_0^\tau dt \langle \Phi_f(t) | V(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \\ T_{fi}^- = -i \int_0^\tau dt \langle \Psi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \end{cases} \quad (2.9)$$

Cette formulation des amplitudes de transition est la pierre angulaire de tout les développements ultérieurs que nous avons menés en condition de perturbation. L'idée fondamentale est maintenant d'approcher les fonctions d'onde $\Psi_{i,f}^{\pm}(\vec{r}, t)$ par des états de Coulomb-Volkov $\chi_{i,f}^{\pm}(\vec{r}, t)$ auxquels est consacré le prochain paragraphe.

2.3 Les états de Coulomb-Volkov

Comme le nom l'indique, ces états sont composés de deux parties traitant soit de l'interaction Coulombienne {électron-noyau} soit de l'interaction {électron-champ électrique} (Volkov). L'idée sous-jacente à la construction de ces états est la similitude entre une collision entre un atome et un ion multichargé et celle d'un atome avec une impulsion laser.

2.3.1 L'analogie collision ionique-collision photonique

Les premières considérations concernent le champ électrique créé par une particule chargée se déplaçant rectilignement au voisinage d'un atome et celui d'un laser. Sous certaines conditions, l'amplitude des champs agissant sur l'électron de l'hydrogène peuvent se ressembler fortement. Deux différences sont à souligner : le champ d'un ion n'oscille pas et la portée infinie du champ Coulombien n'impose pas les mêmes conditions aux limites. Formellement toutefois, il est possible de voir une analogie très forte entre l'ESDT décrivant le comportement d'une fonction d'onde d'un atome hydrogénoïde lorsqu'un projectile multichargé passe suffisamment loin et celle d'un même atome plongé dans un champ laser. Fort de ces considérations, nous pouvons facilement comprendre que les outils formels de la théorie des collisions vont pouvoir être extrapolés pour la description de l'interaction laser atome. Cette dernière n'étant au fond qu'une collision de type photonique. Dans ce cadre, nous allons utiliser le formalisme des ondes distordues où la fonction d'onde d'une cible va pouvoir s'écrire comme le produit d'un état stationnaire et d'un facteur de phase induit par la collision

$$\Psi^{\pm}(\vec{r}, t) \simeq \Phi(\vec{r}, t) \mathcal{L}^{\pm}(\vec{r}, t) \quad (2.10)$$

Naturellement, cette fonction d'onde doit être soumise aux conditions asymptotiques suivantes :

$$\begin{cases} \lim_{\vec{A} \rightarrow 0} \Psi^{\pm}(\vec{r}, t) = \Phi(\vec{r}, t) \\ \lim_{Z \rightarrow 0} \Psi^{\pm}(\vec{r}, t) = \mathcal{V}^{\pm}(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.11)$$

A savoir, lorsque la perturbation s'éteint, elle doit tendre vers un état stationnaire non perturbé état propre du système, et lorsque le champ Coulombien s'éteint, la fonction d'onde doit tendre vers un « état de Volkov » : $\mathcal{V}^\pm(\vec{r}, t)$.

2.3.2 Les états de Volkov

La résolution de l'ESDT dans le cas hydrogénoïde limite où $Z \rightarrow 0$ et où l'interaction avec le laser s'exprime en jauge des longueurs

$$i \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{V}^\pm(\vec{r}, t) = \left[-\frac{\nabla^2}{2} + \vec{r} \cdot \vec{E}(t) \right] \mathcal{V}^\pm(\vec{r}, t) \quad (2.12)$$

est exacte et ses solutions sont appelées « états de Volkov » \mathcal{V}^\pm [12]. Ils représentent le déplacement d'un électron libre dans un champ électrique oscillant. Ces états sont non physiques car la résolution de l'ESDT nous donne l'état d'un **dipôle atomique**, alors que dans ce cas, le système est réduit à un monopôle, l'électron. Ces états s'écrivent comme [122]

$$\mathcal{V}^\pm(\vec{r}, t) = \exp \left(i \vec{p}^\pm(t) \cdot \vec{r} - \frac{i}{2} \int dt' p^{\pm 2}(t') \right) \quad (2.13)$$

où $\vec{p}^\pm(t) = \vec{k} + \vec{A}^\pm(t)$ est l'impulsion généralisée et où le potentiel vecteur s'écrit en jauge de Coulomb

$$\vec{A}^\pm(t) = - \int_{\mp\infty}^t dt' \vec{E}(t') = - \int_{0,\tau}^t dt' \vec{E}(t') \quad (2.14)$$

Insistons sur le fait que ces états doivent constituer une limite vers laquelle toute fonction d'onde solution approchée de l'ESDT doit tendre lorsque le champ Coulombien s'éteint. Nous allons à présent construire les états de Coulomb-Volkov tels que nous les avons employés.

2.3.3 Les états de Coulomb-Volkov

Utilisons l'approximation de la fonction d'onde exacte (2.10) que l'on nommera $\chi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t)$ dans l'ESDT. Cette dernière s'écrit un peu différemment en introduisant un opérateur arbitraire \mathcal{U} mesurant en quelque sorte l'erreur commise par l'approximation

$$i \frac{\partial}{\partial t} \chi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) = (\mathcal{H} - \mathcal{U}_{i,f}^\pm) \chi_{i,f}^\pm(\vec{r}, t) \quad (2.15)$$

En développant le Hamiltonien il vient

$$\left[-\frac{\nabla^2}{2} - \frac{Z}{r} + \vec{r} \cdot \vec{E}(t) - \mathcal{U}_{i,f}^\pm \right] \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t) = \mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t) i \frac{\partial \Phi_{i,f}(\vec{r}, t)}{\partial t} + \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) i \frac{\partial \mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (2.16)$$

Puis en développant et en utilisant (2.4) dans l'expression précédente, il vient

$$\Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \left[i \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\nabla^2}{2} - \vec{r} \cdot \vec{E}(t) \right] \mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t) = -\mathcal{U}_{i,f}^\pm (\Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t)) - \vec{\nabla} \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\nabla} \mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t) \quad (2.17)$$

Il est à présent nécessaire de distinguer le traitement pour \mathcal{L}^+ de celui pour \mathcal{L}^- car comme nous allons le voir, les conditions aux limites impliquent des choix différents dans chacun des deux cas. Si l'étude porte sur l'ionisation, il faut garder à l'esprit que la transition va s'effectuer entre un état atomique lié et un état du continuum. Puisque les opérateurs $\mathcal{U}_{i,f}^\pm$ sont arbitraires, il est possible de poser

$$\mathcal{U}_i^+ (\Phi_i(\vec{r}, t) \mathcal{L}^+(\vec{r}, t)) = -\vec{\nabla} \Phi_i(\vec{r}, t) \cdot \vec{\nabla} \mathcal{L}^+(\vec{r}, t) \quad (2.18)$$

et l'équation (2.17) devient identique à (2.12). Cependant, les conditions (2.3) nous mènent à $\lim_{t \rightarrow -\infty} \mathcal{L}^+(\vec{r}, t) = 1$ qui impose $\vec{k} = \vec{0}$ dans (2.13) car l'état atomique limite considéré est un **état lié** de symétrie sphérique où en moyenne $\vec{k} = \vec{0}$. Ainsi, la « phase de Volkov »⁴ s'écrit

$$\mathcal{L}^+(\vec{r}, t) = \exp \left(i \vec{A}^+(t) \cdot \vec{r} - \frac{i}{2} \int_0^t dt' A^{+2}(t') \right) \quad (2.19)$$

En procédant de la même manière pour $\mathcal{L}^-(\vec{r}, t)$, mais en posant

$$\mathcal{U}_f^- (\Phi_f(\vec{r}, t) \mathcal{L}^-(\vec{r}, t)) = \left[i \vec{k} \Phi_f(\vec{r}, t) - \vec{\nabla} \Phi_f(\vec{r}, t) \right] \cdot \vec{\nabla} \mathcal{L}^-(\vec{r}, t) \quad (2.20)$$

et en utilisant $\lim_{t \rightarrow +\infty} \mathcal{L}^-(\vec{r}, t) = 1$ qui impose que l'état considéré final soit un **état du continuum** décrit par une fonction d'onde Coulombienne $\mathcal{C}_{\vec{k}}(\vec{r}, t)$. Il vient

$$\mathcal{L}^-(\vec{r}, t) = \exp \left(i \vec{A}^-(t) \cdot \vec{r} - \frac{i}{2} \int_\tau^t dt' \left[A^{-2}(t') + 2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t') \right] \right) \quad (2.21)$$

⁴Nous la dénommons ainsi parce qu'elle présente des similitudes avec l'état de Volkov

Le terme $2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t')$ permet de retrouver exactement l'état de Volkov quand $Z \rightarrow 0$. En résumé, les états de Coulomb-Volkov s'écrivent $\chi_{i,f}^{CV\pm}(\vec{r}, t) = \Phi_{i,f}(\vec{r}, t)\mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t)$ et nous voyons tout de suite qu'ils satisfont les conditions requises car

$$\begin{cases} \lim_{\vec{A} \rightarrow 0} \chi_{i,f}^{CV\pm}(\vec{r}, t) = \Phi_{i,f}(\vec{r}, t) \\ \lim_{Z \rightarrow 0} \chi_{i,f}^{CV\pm}(\vec{r}, t) = \mathcal{V}^\pm(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.22)$$

Dans la mesure du possible, nous avons comparé les résultats Coulomb-Volkov obtenus pour l'hydrogène avec des calculs *ab initio* issus de la résolution de l'ESDT sur une base de B-splines (cf. §1.3.1 et référés par ESDT). Nous pouvons ainsi mesurer l'erreur commise par l'emploi de ce type de fonctions d'onde.

2.3.4 Suppression des termes de décalage dans les approches Coulomb-Volkov

Les spectres ATI produits par ce type de calcul présentent un décalage des pics par rapport à des résultats ESDT, dû au terme $\int dt A^{\pm 2}(t)$ [141], présent dans l'argument de la phase de Volkov. Il peut être interprété comme une énergie de vibration de l'électron dans le champ électromagnétique, c'est-à-dire l'énergie pondéromotrice. Comme décrit dans [46] ce terme déplace de la même façon tout les niveaux de la structure atomique et ainsi ne change pas le potentiel d'ionisation. Cependant, sa présence dans la phase de Volkov de l'état final perturbé mais pas dans la fonction d'onde initiale $\Phi_{i,f}(t)$ agit sur l'énergie de cet état par

$$\frac{k^2}{2} + \frac{Z}{2} + \frac{\vec{A}^-(t)^2}{2} - \omega = 0 \quad (2.23)$$

et mène naturellement à un décalage des pics ATI. La suppression de ce terme est indispensable pour décrire correctement le spectre des électrons [141], et c'est ce qui sera fait dans toutes les approches Coulomb-Volkov ultérieures.

2.3.5 Développement dans la jauge des vitesses

Le développement d'une théorie doit en principe être indépendante du choix de la jauge. Cependant, il n'en est pas ainsi pour le développement Coulomb-Volkov en jauge des longueurs. Pour le montrer, il faut développer le Hamiltonien à la limite non-relativiste et utiliser $\vec{P} = \vec{k} - \vec{A}(t)$ l'impulsion conjuguée de Lagrange, où \vec{k} est l'impulsion vraie de l'électron en l'absence de

champ. Nous pouvons alors naturellement déduire l'état de Volkov en jauge des vitesses, en se plaçant également dans la jauge de Coulomb et en posant $\vec{P} = \vec{K}$

$$\mathcal{V}_V(\vec{r}, t) = \exp \left[i\vec{K} \cdot \vec{r} - i \int_0^t dt' \left(\vec{K} + \vec{A}(t') \right)^2 \right] \quad (2.24)$$

Puis, en suivant la démarche de [122] qui consiste à introduire l'influence du champ Coulombien en multipliant l'état de Volkov par une fonction dépendante de \vec{r} et t comme $\chi_V(\vec{r}, t) = f^-(\vec{r}, t) \times \mathcal{V}_V(\vec{r}, t)$ et l'introduisant dans l'équation de Schrödinger en jauge des vitesses

$$i \frac{\partial}{\partial t} \chi_V(\vec{r}, t) = \left[-\frac{Z}{r} - \frac{\nabla^2}{2} + \vec{A}(t) \cdot \vec{\nabla} + \frac{\vec{A}(t)^2}{2} \right] \chi_V(\vec{r}, t) \quad (2.25)$$

nous parvenons ainsi à définir f^- comme une fonction hypergéométrique dépendante de \vec{K} elle-même dépendante du temps au-travers du potentiel vecteur. Nous voyons de fait que le degré d'approximation de la fonction d'onde de Coulomb-Volkov n'est pas équivalent dans les deux jauges. Il est donc impossible de définir directement la transformation de ce type de fonction d'onde dans l'une ou l'autre jauge.

2.4 Application à l'excitation multiphotonique de l'hydrogène

L'application de la théorie Coulomb-Volkov à l'excitation des premiers états liés de l'hydrogène se justifie par les très bons résultats obtenus pour l'ionisation avec des impulsions XUV femtosecondes [22]. Comme nous l'avons déjà évoqué, ces résultats sont encadrés par des contraintes sur l'énergie des photons mis en jeu et l'intensité du laser. Les développements suivants ont eu pour but de s'en affranchir, en particulier pour l'étude de l'ionisation à l'aide de photons d'énergie inférieure à I_p . En premier lieu, un développement appelé MCV2 (Modified CV2) adapté pour des énergies dans l'intervalle $\frac{I_p}{2} < \omega < I_p$ reproduit parfaitement des résultats ESDT [23]. C'est une méthode hybride fondée sur le calcul des transitions à un photon vers les premiers états liés de l'hydrogène par un développement de Born au premier ordre, puis l'ionisation multiphotonique subséquente par un développement Coulomb-Volkov. Ainsi, l'ajout successif des états $3p$, $4p$ et $5p$ dans le calcul final, a permis de mettre en évidence leur contribution à l'ATI et de

décrire les structures secondaires liées aux transitions par ces états. Dans la perspective d'utiliser des photons d'énergie encore plus faible (c'est-à-dire inférieurs à $\frac{I_p}{2}$), l'excitation multiphotonique devient dès lors possible. Ce phénomène rentre parfaitement dans le cadre d'une description Coulomb-Volkov à deux niveaux et c'est naturellement que nous nous sommes penchés sur cette étude. Le but final étant d'utiliser ces résultats pour une description globale de l'ionisation multiphotonique par des photons d'énergie proche de ce qui peut être produit expérimentalement. Nous allons donc proposer dans le paragraphe suivant un développement général qui sera ensuite dérivé au chapitre 3 à l'étude particulière de l'excitation des états $H(2p)$ et $H(2s)$.

2.4.1 Amplitude de transition appliquée aux transitions entre états liés de l'hydrogène

Tout d'abord, exprimons de manière générale les fonctions d'onde des états atomiques liés de l'hydrogène, représentées par les nombres quantiques $\{n\ell m\}$

$$\Phi_{n\ell m}(\vec{r}, t) = \varphi_{n\ell m}(\vec{r}) \exp(-i\varepsilon_n t) \quad (2.26)$$

où l'énergie du niveau est $\varepsilon_n = -\frac{Z}{n^2}$ en unités atomiques. L'état de Coulomb-Volkov associé sera $\chi_{n\ell m}^\pm(\vec{r}, t) = \Phi_{n\ell m}(\vec{r}, t)\mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t)$ avec la phase de Volkov (2.19) où l'on a négligé $\vec{A}^2(t)$ et qui s'exprime comme $\mathcal{L}^\pm(\vec{r}, t) = \exp(i\vec{A}^\pm(t) \cdot \vec{r})$. Les éléments de transition post et prior s'écrivent alors, avec pour plus de facilité d'écriture $i = \{n\ell m\}$ et $f = \{n'\ell'm'\}$

$$\begin{cases} T_{fi}^{CV2+} \simeq -i \int_0^\tau dt \langle \Phi_f(t) | V(t) | \chi_i^+(t) \rangle \\ T_{fi}^{CV2-} \simeq -i \int_0^\tau dt \langle \chi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \end{cases} \quad (2.27)$$

Puis en remplaçant les états de Coulomb-Volkov par leurs expressions précédentes et en utilisant les propriétés du produit Hermitien

$$\begin{cases} T_{fi}^{CV2+} \simeq -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r} \Phi_f^*(\vec{r}, t) V(t) \Phi_i(\vec{r}, t) \mathcal{L}^+(\vec{r}, t) \\ T_{fi}^{CV2-} \simeq -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r} \Phi_f^*(\vec{r}, t) \mathcal{L}^{-*}(\vec{r}, t) V(t) \Phi_i(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.28)$$

L'exposant « $*$ » indique le complexe conjugué. En injectant (2.26) dans les équations précédentes, il vient

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{fi}^{CV2+} \simeq -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r} \varphi_f^*(\vec{r}) \exp(i\varepsilon_f t) V(t) \varphi_i(\vec{r}) \\ \quad \times \exp(-i\varepsilon_i t) \mathcal{L}^+(\vec{r}, t) \\ T_{fi}^{CV2-} \simeq -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r} \varphi_f^*(\vec{r}) \exp(i\varepsilon_f t) \mathcal{L}^{-*}(\vec{r}, t) \\ \quad \times V(t) \varphi_i(\vec{r}) \exp(-i\varepsilon_i t) \end{array} \right. \quad (2.29)$$

puis en utilisant l'expression de la phase de Volkov exposée plus haut ainsi que l'expression de $V(t)$ en jauge des longueurs $V(t) = \vec{r} \cdot \vec{E}(t)$

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{fi}^{CV2+} \simeq -i \int_0^\tau dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \\ \quad \times \int d\vec{r} \exp(i\vec{A}^+(t) \cdot \vec{r}) \varphi_f^*(\vec{r}) \vec{E}(t) \cdot \vec{r} \varphi_i(\vec{r}) \\ T_{fi}^{CV2-} \simeq -i \int_0^\tau dt \exp(i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t) \\ \quad \times \int d\vec{r} \exp(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}) \varphi_f^*(\vec{r}) \vec{E}(t) \cdot \vec{r} \varphi_i(\vec{r}) \end{array} \right. \quad (2.30)$$

puis le fait que $\vec{E}(t) = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{A}^\pm(t)$ nous mène à $\vec{E}(t) \cdot \vec{r} \exp(\pm i\vec{A}^\pm(t) \cdot \vec{r}) = \pm i \frac{\partial}{\partial t} \exp(\pm i\vec{A}^\pm(t) \cdot \vec{r})$ nous pouvons alors réécrire (2.30)

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{fi}^{CV2+} \simeq - \int_0^\tau dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \\ \quad \times \frac{\partial}{\partial t} \int d\vec{r} \exp(i\vec{A}^+(t) \cdot \vec{r}) \varphi_f^*(\vec{r}) \varphi_i(\vec{r}) \\ T_{fi}^{CV2-} \simeq + \int_0^\tau dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \\ \quad \times \frac{\partial}{\partial t} \int d\vec{r} \exp(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}) \varphi_f^*(\vec{r}) \varphi_i(\vec{r}) \end{array} \right. \quad (2.31)$$

Dès lors, on peut définir deux fonctions f et g

$$\left\{ \begin{array}{l} f(t) = \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \\ g^\pm(t) = \int d\vec{r} \exp(\pm i\vec{A}^\pm(t) \cdot \vec{r}) \varphi_f^*(\vec{r}) \varphi_i(\vec{r}) \end{array} \right. \quad (2.32)$$

nous permettant d'écrire (2.31) en intégrant par parties

$$\begin{aligned} T_{fi}^{CV2\pm} &\simeq \mp \int_0^\tau dt f(t) \frac{\partial g^\pm(t)}{\partial t} \\ &\simeq \mp \left\{ [f(t)g^\pm(t)]_0^\tau - \int_0^\tau dt g^\pm(t) \frac{\partial f(t)}{\partial t} \right\} + \delta_{fi} \end{aligned} \quad (2.33)$$

Pour une véritable impulsion laser, on a $\vec{A}^\pm(0) = \vec{A}^\pm(\tau) = \vec{0}$ par conséquent, on peut immédiatement écrire $g^\pm(0) = g^\pm(\tau) = \delta_{fi}$ du fait de l'orthogonalité des fonctions d'onde. Dès lors, dès que $i \neq f$

$$T_{fi}^{CV2\pm} \simeq \pm \int_0^\tau dt g^\pm(t) \frac{\partial f(t)}{\partial t} \quad (2.34)$$

Puis, en utilisant les expressions (2.32)

$$\begin{aligned} T_{fi}^{CV2\pm} &\simeq \pm i(\varepsilon_f - \varepsilon_i) \int_0^\tau dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \\ &\quad \times \int d\vec{r} \exp\left(\pm i\vec{A}^\pm(t) \cdot \vec{r}\right) \varphi_f^*(\vec{r}) \varphi_i(\vec{r}) \end{aligned} \quad (2.35)$$

C'est à partir de cette expression très générale que nous dériverons au chapitre suivant les expressions adaptées aux transitions multiphotoniques entre l'état fondamental et les premiers états de l'hydrogène. Nous utiliserons alors les expressions bien connues des fonctions d'onde $H(2s)$, $H(2p)$ pour décrire les états finaux et $H(1s)$ pour l'état fondamental.

2.4.2 Le développement multiphotonique

Afin d'illustrer le caractère multiphotonique de (2.35) regardons en détail (2.30). Nous remarquons tout d'abord que la partie responsable de la transition est contenue dans l'intégrale sur \vec{r} . Ainsi, pour chaque pas de temps, la configuration atomique est « gelée », le calcul s'effectuant alors que le champ Coulombien ne varie pas. Ce dernier n'a donc aucun effet dynamique sur la transition, il n'intervient que dans la structure atomique [122]. Intéressons-nous à la présence de la phase de Volkov dans la seconde intégrale. Son développement en série donne

$$\exp(i\vec{A} \cdot \vec{r}) = 1 + i\vec{A} \cdot \vec{r} + \frac{(\vec{A} \cdot \vec{r})^2}{2} + \dots + \frac{(\vec{A} \cdot \vec{r})^n}{n!} + \Theta\left((\vec{A} \cdot \vec{r})^{n+1}\right) \quad (2.36)$$

Il s'agit donc d'un développement multipolaire à l'ordre n représentant l'absorption de n photons, dont on démontrera qu'ils « ignorent » le passage éventuel par des états intermédiaires résonants.

2.5 Application à l'hélium

En suivant la même démarche, nous allons développer une amplitude de transition pour l'ionisation double de l'hélium. D'un point de vue didactique, nous nous sommes intéressés à la forme prior. En effet, il s'avère plus intuitif de passer d'un état initial non perturbé, vers un état final qui l'est sous l'effet du champ. Ceci étant, il est évident que des résultats identiques devraient être obtenus avec les deux formulations si les fonctions d'onde utilisées étaient exactes. Hormis le développement analytique proprement dit, deux difficultés apparaissent immédiatement : la description de chacun des états initial et final et en particulier des fonctions d'onde associées. Nous savons que nous ne pouvons pas trouver de solution analytique exacte comme pour le cas de l'hydrogène, la difficulté venant du fait que ces états sont solutions d'un problème à trois corps en interaction. En pratique, si la description des états liés et du simple continuum de l'hélium peut être approchée avec une très bonne précision, des approximations majeures vont intervenir pour celle du double continuum. En particulier, construire une fonction d'onde correcte pour l'étude des états du seuil d'ionisation mais également les bonnes conditions de charge asymptotiques est extrêmement difficile. C'est cependant dans cet état que vont se trouver les deux électrons après ionisation complète de l'hélium : deux électrons en interaction Coulombienne entre eux et avec l'ion résiduel doublement chargé. Nous pointons là le problème essentiel que nous recontrons, à savoir comment décrire à la fois les interactions {électron-électron} dénommées corrélations électroniques, et {électron-ion} ? Nous reviendrons sur les corrélations électroniques dans la partie consacrée à l'hélium où nous détaillerons les moyens mis en œuvre pour les décrire. Dans ce qui suit, nous proposons une description de l'hélium fondée sur l'interaction {électron-ion} sans corrélations dans l'état final. Pour cela, débutons par des considérations sur la construction des fonctions d'onde. Les électrons satisfont au principe d'exclusion de Pauli dont la conséquence est l'antisymétrie des fonctions d'onde. Cette propriété peut être résumée par les relations suivantes

$$\begin{aligned}\Psi_a(1, 2) &= \varphi^{para}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \Sigma^{triplet}(1, 2) \\ \Psi_a(1, 2) &= \varphi^{ortho}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \Sigma^{singulet}(1, 2)\end{aligned}\tag{2.37}$$

Ce qui signifie qu'une fonction d'onde de deux électrons étiquetés $(1, 2)$ an-

tisymétrique (indiquée « a ») voit sa partie spatiale φ « para » pour un état triplet de spin $\Sigma^{triplet}(1, 2)$ ou sa partie spatiale « ortho » pour un état singulet de spin $\Sigma^{singulet}(1, 2)$ respectivement états propres de l'opérateur \mathcal{P}_{12} « échange des positions $\vec{r}_1 \leftrightarrow \vec{r}_2$ ». Les paragraphes suivants sont consacrés au détail de la construction de ces fonctions d'onde mais il faut préalablement définir les systèmes de coordonnées employés dans les calculs.

2.5.1 Systèmes de coordonnées

Par analogie avec l'hydrogène, chaque électron de la structure atomique est repéré par rapport au centre de masse que constitue le noyau, à l'aide des rayons vecteurs \vec{r}_1 et \vec{r}_2 . Dans le double continuum, chaque paquet d'onde électronique est également repéré par rapport au même centre de masse à l'aide des vecteurs d'onde \vec{k} et \vec{k}' . Puisque la représentation s'effectue en coordonnées sphériques, chaque couple angulaire (θ, ϕ) est défini par rapport au vecteur de polarisation $\vec{\lambda}$, imposant la direction de l'axe (O_z) du repère comme axe de quantification (cf. FIG. 2.1).

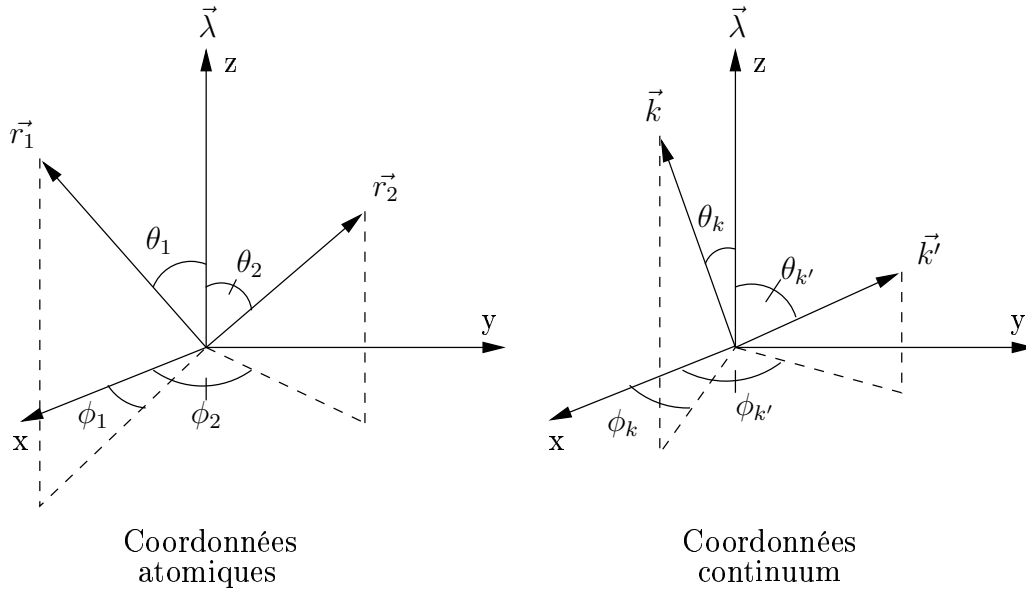


FIG. 2.1 – Système de coordonnées électroniques.

2.5.2 Fonction d'onde initiale

Pour des raisons de simplicité, nous allons la décrire en première approximation par un produit de deux orbitales hydrogénoïdes $1s$. Dans ce cas, chacun des électrons subit un champ Coulombien créé par un noyau de charge écrantée $Z_i = 1,6875$ définie par le principe variationnel [142]. L'énergie de l'état fondamental $He(1s)^2$ que l'on va utiliser est alors $\varepsilon_{He} = -2,84765625$ *u.a.* Cet état étant un singulet de spin, nous pouvons alors écrire

$$\chi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \varphi_{1s}(\vec{r}_1)\varphi_{1s}(\vec{r}_2) \exp(-i\varepsilon_{He}t) \quad (2.38)$$

avec les orbitales hydrogénoïdes $1s$ bien connues

$$\varphi_{1s}(\vec{r}) = \frac{Z_i^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \exp(-Z_i r) \quad (2.39)$$

En utilisant cette forme de fonction d'onde, (2.38) s'écrit naturellement

$$\chi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \frac{Z_i^3}{\pi} \exp[-Z_i(r_1 + r_2)] \exp(-i\varepsilon_{He}t) \quad (2.40)$$

Nous pouvons remarquer que l'utilisation d'une charge écrantée relève d'une certaine manière des corrélations dans l'état initial.

2.5.3 Fonction d'onde finale

Le spin électronique total restant inchangé, la fonction d'onde finale que l'on va utiliser s'écrit comme une somme symétrisée de produits d'orbitales monoélectroniques

$$\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = N[\chi_\alpha^-(\vec{r}_1, t)\chi_\beta^-(\vec{r}_2, t) + \chi_\alpha^-(\vec{r}_2, t)\chi_\beta^-(\vec{r}_1, t)] \quad (2.41)$$

où N est le facteur de normalisation ; α et β représentent soit un état lié soit un état du continuum. Puisqu'on étudie la double photoionisation, les deux électrons de He se trouvent après interaction dans le continuum. Chacune des deux orbitales sera représentée par une fonction d'onde respectivement labélisée par chaque vecteur d'onde \vec{k} et \vec{k}' . Ceci nous mène à écrire $\alpha = \vec{k}$ et $\beta = \vec{k}'$ et ainsi $\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ devient

$$\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = N[\chi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1, t)\chi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2, t) + \chi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2, t)\chi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1, t)] \quad (2.42)$$

L'évaluation de N est un point délicat abordé dans l'annexe qui lui est consacrée (cf. Annexe B). Dans le cadre de la théorie Coulomb-Volkov nous allons décrire chacun des états finaux par le produit d'une onde coulombienne entrante (dans un potentiel attractif et normalisée sur l'échelle des impulsions) et d'une phase de Volkov

$$\chi_k^-(\vec{r}, t) = \mathcal{C}_k^-(\vec{r}, t) \mathcal{L}_k^-(\vec{r}, t) \quad (2.43)$$

où la fonction coulombienne est de la forme

$$\mathcal{C}_k^-(\vec{r}, t) = \psi_k^-(\vec{r}) \exp(-i\varepsilon_k^- t) \quad (2.44)$$

d'énergie $\varepsilon_k^- = \frac{k^2}{2}$. Sa partie spatiale est

$$\begin{aligned} \psi_k^-(\vec{r}) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1+i\nu) \exp\left(i\vec{k} \cdot \vec{r}\right) \\ \times {}_1F_1(-i\nu; 1; -ikr - i\vec{k} \cdot \vec{r}) \end{aligned} \quad (2.45)$$

avec $\nu = \frac{Z_k}{k}$. Par ailleurs, nous savons désormais que la phase de Volkov s'écrit dans le cas d'une ionisation (cf. §2.3.3)

$$\mathcal{L}_k^-(\vec{r}, t) = \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r} - i\vec{k} \cdot \int_{\tau}^t dt' \vec{A}^-(t')\right) \quad (2.46)$$

De manière synthétique, compte-tenu de (2.43), (2.44) et (2.45), (2.42) devient

$$\begin{aligned} \chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \\ N \left[\psi_k^-(\vec{r}_1) \psi_{k'}^-(\vec{r}_2) \exp[-i(\varepsilon_k^- + \varepsilon_{k'}^-)t] \mathcal{L}_k^-(\vec{r}_1, t) \mathcal{L}_{k'}^-(\vec{r}_2, t) + \right. \\ \left. \psi_k^-(\vec{r}_2) \psi_{k'}^-(\vec{r}_1) \exp[-i(\varepsilon_k^- + \varepsilon_{k'}^-)t] \mathcal{L}_k^-(\vec{r}_1, t) \mathcal{L}_{k'}^-(\vec{r}_2, t) \right] \end{aligned} \quad (2.47)$$

Où, plus simplement au vu de (2.46)

$$\begin{aligned} \chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = N \left[\psi_k^-(\vec{r}_1) \psi_{k'}^-(\vec{r}_2) + \psi_k^-(\vec{r}_2) \psi_{k'}^-(\vec{r}_1) \right] \\ \times \exp[-i(\varepsilon_k^- + \varepsilon_{k'}^-)t] \mathcal{L}_{\vec{k}\vec{k}'}^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \end{aligned} \quad (2.48)$$

avec

$$\mathcal{L}_{\vec{k}\vec{k}'}^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \exp\left[i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) - i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_{\tau}^t dt' \vec{A}^-(t')\right] \quad (2.49)$$

Il faut insister sur le fait qu'à ce stade du développement, les corrélations électroniques ne sont pas explicitement prises en compte dans l'état final.

L'impact de ces corrélations sur les calculs de distributions électroniques angulaires et en énergie mais aussi sur les sections efficaces constituera l'une des thématiques de la partie 2. Dans un premier temps, nous approchons l'état final comme celui de deux électrons sans interaction entre eux et se déplaçant dans un champ Coulombien de charge $Z_k = Z_{k'} = 2$. Développons à présent le calcul de l'amplitude de transition.

2.5.4 Amplitude de transition appliquée à l'ionisation double de l'hélium

Nous allons commencer par exploiter la forme prior

$$T_{if}^- = -i \int_0^\tau dt \langle \Psi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (2.50)$$

Ce qui se traduit explicitement par projection dans l'espace des configurations en utilisant les propriétés du produit hermitien

$$T_{if}^- = -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \Psi_f^{-*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (2.51)$$

\vec{r}_1 et \vec{r}_2 représentent les positions respectives des électrons par rapport au centre de masse confondu avec le noyau. Comme pour l'hydrogène, $\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ est la fonction d'onde du système non perturbé dans l'état initial et $\Psi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ est la fonction d'onde du système perturbé à chaque instant t de l'interaction et satisfait la condition asymptotique

$$\lim_{t \rightarrow +\infty} \Psi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (2.52)$$

où $\Phi_f(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ est la fonction d'onde du système non perturbé dans l'état final. $V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ est la perturbation due au laser et agissant sur le système diélectronique. Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique elle s'exprime comme

$$V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \vec{E}(t) \quad (2.53)$$

Dès lors, si on remplace respectivement les fonctions d'onde $\Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ et $\Psi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ par des fonctions d'onde approchées (2.38), (2.48) et en utilisant (2.53), l'amplitude de transition (2.51) que l'on labellise par $(1s)^2$ devient

$$\begin{aligned}
T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 N^* \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] \\
& \times \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'}) t \right] \mathcal{L}_{\vec{k}\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \vec{E}(t) \\
& \times \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \exp(-i\varepsilon_{He}t)
\end{aligned} \tag{2.54}$$

En introduisant l'expression des fonctions d'onde et la phase de Volkov (2.49) puis en séparant les termes ne dépendant que du temps de ceux dépendant aussi de \vec{r}_1 et \vec{r}_2 , l'expression précédente s'écrit alors

$$\begin{aligned}
T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -i \int_0^\tau dt N^* \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right. \\
& \left. + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\
& \times \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \\
& \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \vec{r}_1 \cdot \vec{E}(t) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \right. \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \vec{r}_2 \cdot \vec{E}(t) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \vec{r}_1 \cdot \vec{E}(t) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
& \left. + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \vec{r}_2 \cdot \vec{E}(t) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \right]
\end{aligned} \tag{2.55}$$

En remarquant que dans le facteur entre crochets, le premier et le quatrième terme d'une part, le second et le troisième d'autre part, sont identiques dans l'échange de \vec{r}_1 et \vec{r}_2 , on peut simplifier en se souvenant que le facteur de normalisation N est réel

$$\begin{aligned}
T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -2iN \int_0^\tau dt \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right. \\
& \left. + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\
& \times \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \\
& \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \vec{r}_1 \cdot \vec{E}(t) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \right. \\
& \left. + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \vec{r}_2 \cdot \vec{E}(t) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \right]
\end{aligned} \tag{2.56}$$

En regroupant les facteurs dépendants du temps et ceux dépendant aussi de \vec{r}_1 d'une part, de \vec{r}_2 d'autre part, puis en développant les produits scalaires $\vec{r}_1 \cdot \vec{E}(t)$ et $\vec{r}_2 \cdot \vec{E}(t)$, il est possible de mettre $E(t)$ en facteur

$$\begin{aligned}
T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -2iN \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right. \\
& \left. + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\
& \times \left[\int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1 \right] r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \right. \\
& \quad \times \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2 \right] \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
& + \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2 \right] r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
& \quad \times \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1 \right] \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \Big]
\end{aligned} \tag{2.57}$$

On définit chacune des intégrales du crochet comme suit

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{I}_{\vec{k}, \vec{k}'}(t) = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1 \right] r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\ \quad \times \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2 \right] \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\ \mathcal{J}_{\vec{k}', \vec{k}}(t) = \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2 \right] r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\ \quad \times \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1 \right] \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \end{array} \right. \tag{2.58}$$

En vertu de ce qui précède, (2.57) se met sous la forme plus compacte :

$$\begin{aligned}
T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -2iN \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right. \\
& \left. + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\
& \times \left(\mathcal{I}_{\vec{k},\vec{k}'}(t) + \mathcal{J}_{\vec{k}',\vec{k}}(t) \right)
\end{aligned} \quad (2.59)$$

\vec{r}_1 et \vec{r}_2 étant des variables muettes d'intégration, on remarque aussitôt que l'on a $\mathcal{I}_{\vec{k},\vec{k}'}(t) = \mathcal{J}_{\vec{k},\vec{k}'}(t)$, et l'expression de l'élément de transition prend donc la forme simple suivante

$$\begin{aligned}
T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -2iN \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right. \\
& \left. + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\
& \times \left(\mathcal{I}_{\vec{k},\vec{k}'}(t) + \mathcal{I}_{\vec{k}',\vec{k}}(t) \right)
\end{aligned} \quad (2.60)$$

où l'intégrale $\mathcal{I}_{\vec{k},\vec{k}'}(t)$ s'écrit sous la forme d'un produit

$$\mathcal{I}_{\vec{k},\vec{k}'}(t) = \tilde{I}_{\vec{k}}(t) \tilde{J}_{\vec{k}'}(t) \quad (2.61)$$

avec

$$\begin{cases} \tilde{I}_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) \exp \left(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r} \right) r \cos \theta \varphi_{1s}(\vec{r}) \\ \tilde{J}_{\vec{k}'}(t) = \int d\vec{r} \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}) \exp \left(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r} \right) \varphi_{1s}(\vec{r}) \end{cases} \quad (2.62)$$

Le développement formel des intégrales $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ et $\tilde{I}_{\vec{k}'}(t)$ est détaillé dans les annexes C et D respectivement d'où nous tirons les expressions finales

$$\left\{ \begin{aligned} \tilde{I}_{\vec{k}}(t) &= \left(\frac{Z_i}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{16}{\pi} \exp \left(\frac{\pi\nu}{2} \right) \Gamma(1 - i\nu) \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \times \\ &\quad \left\{ -iZ_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} + \nu A_z^-(1 + i\nu)(Z_i - ik) \times \right. \\ &\quad \left. \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} + \nu(1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^- \right] \right\} \\ \tilde{J}_{\vec{k}}(t) &= \left(\frac{Z_i}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{8}{\pi} \exp \left(\frac{\pi\nu}{2} \right) \Gamma(1 - i\nu) \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \times \\ &\quad \left[Z_i (1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu (Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \end{aligned} \right. \quad (2.63)$$

avec \mathcal{B} , \mathcal{H} et $\vec{\kappa}$ définis comme suit

$$\begin{cases} \mathcal{B} = \kappa^2 + Z_i^2 \\ \mathcal{H} = \mathcal{B} - 2 \left(\vec{k} \cdot \vec{\kappa} + i k Z_i \right) \\ \vec{\kappa} = \vec{k} + \vec{A}^-(t) \end{cases} \quad (2.64)$$

Ceci nous permet de réécrire (2.61) en respectant l'indexation en k et k' . Nous noterons avec le label « ' » toutes les quantités dépendant de k' . Ainsi, dans \mathcal{B}' et \mathcal{H}' , \vec{k} et $\vec{\kappa}$ deviennent \vec{k}' et $\vec{\kappa}' = \vec{k}' + \vec{A}^-(t)$

$$\begin{aligned} \mathcal{I}_{\vec{k}, \vec{k}'}(t) = & \left(\frac{Z_i}{2} \right)^3 \frac{128}{\pi^2} \exp \left(\frac{\pi}{2} (\nu + \nu') \right) \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \\ & \times \mathcal{B}'^{i\nu'-2} \mathcal{H}'^{-i\nu'-1} \left\{ \left[-i Z_i \kappa_z (1 - i\nu) (2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} + \nu A_z^-(1 + i\nu) \right. \right. \\ & \times (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} + \nu (1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^- \right] \\ & \left. \left. \times \left[Z_i (1 - i\nu') \mathcal{H}' + i\nu' (Z_i - ik') \mathcal{B}' \right] \right] \right\} \end{aligned} \quad (2.65)$$

Avec cette dernière expression, nous pouvons exprimer (2.60) en regroupant les termes ne dépendant pas de t devant l'intégrale

$$\begin{aligned} T_{(1s)^2}^{CV2-} \simeq & -2iN \left(\frac{Z_i}{2} \right)^3 \frac{128}{\pi^2} \exp \left[\frac{\pi}{2} (\nu + \nu') \right] \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') \\ & \times \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\ & \times \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{B}'^{i\nu'-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \mathcal{H}'^{-i\nu'-1} \left\{ \left[-i Z_i \kappa_z (1 - i\nu) (2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} \right. \right. \\ & + \nu A_z^-(1 + i\nu) \times (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} + \nu (1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^- \right] \\ & \left. \left. \times \left[Z_i (1 - i\nu') \mathcal{H}' + i\nu' (Z_i - ik') \mathcal{B}' \right] + \left[k \longleftrightarrow k' \right] \times \left[k \longleftrightarrow k' \right] \right\} \end{aligned} \quad (2.66)$$

Enfin, en utilisant le résultat de l'annexe B, nous nous placerons dans le cas le plus courant où $k \neq k'$, ce qui impose $N = \frac{1}{\sqrt{2}}$.

2.6 Conclusion

Ce chapitre, très « mathématique », nous a permis de jeter les fondations sur lesquelles nous allons construire l'étude Coulomb-Volkov. Le développement des amplitudes de transition constitue véritablement la base des calculs que nous souhaitons mener. En effet, les informations auxquelles nous souhaitons aboutir, probabilités d'excitation de l'hydrogène ou distributions en angle et en énergie et sections efficaces totales à 1 ou 2 photons de l'hélium découlent directement des amplitudes de transition $T_{fi}^{CV2\pm}$ (2.35) et $T_{(1s)^2}^{CV2-}$ (2.66). Elles nous permettront de confirmer ou d'infirmer l'approche Coulomb-Volkov dans le domaine des impulsions brèves et intenses mais aussi de se déplacer vers un champ d'étude plus ouvert comme celui de la double ionisation à deux photons (DPI2 ω) de l'hélium. Nous verrons alors comment nous pouvons raffiner la description en particulier pour prendre en compte, ou du moins reproduire la répulsion électronique. L'étude de cette dernière, au-travers des corrélations électroniques constitue une gageure récurrente de la physique des atomes polyélectroniques.

Dynamique de l'hydrogène atomique en interaction avec des impulsions laser brèves et intenses

3.1 Introduction

L'ÉTUDE de la dynamique atomique que nous menons dans ce chapitre est orientée dans deux directions. Chacune d'elles constitue une extension du domaine d'application des méthodes Coulomb-Volkov standard. Tout d'abord, nous nous sommes focalisés sur l'ionisation de l'hydrogène hors condition de perturbation. L'utilisation de champs intenses implique, comme nous l'avons déjà souligné, la prise en compte du dépeuplement de l'état fondamental au cours de l'interaction. Pour des raisons de simplicité, et en suivant le travail de R. Gayet [141] nous avons débuté cette étude avec une impulsion d'énergie de photon supérieure au potentiel d'ionisation. Ceci permet de négliger les éventuelles résonances par tous les états intermédiaires de la structure atomique. Dans ces conditions, nous allons montrer comment il est possible de calculer le dépeuplement de l'état fondamental par un système d'équations couplées réduites à deux niveaux. Puis son application dans le cas de l'ionisation d'un cristal présentant un défaut de structure, assimilé à un atome hydrogénoïde nous fournira un exemple concret. Dans un deuxième temps, l'utilisation de petites énergies de photon inférieures à la moitié du potentiel d'ionisation nous a fourni un autre volet d'exploration. Il s'agit de voir si une description Coulomb-Volkov est adaptée aux transitions multiphotoniques pouvant intervenir entre des états liés. Pour cela, nous nous sommes spécifiquement penchés sur les transitions entre l'état fondamental

et les deux premiers états liés $H(2s)$ et $H(2p)$. Parallèlement, nous avons exploité un code de résolution de l'ESDT sur une base de B-splines (simplement dénommés ESDT par la suite) fourni par E. Cormier, afin de confronter nos résultats. Ces deux étapes peuvent constituer les premiers pas vers une description plus large de l'ionisation de l'hydrogène en considérant non seulement les transitions par des niveaux intermédiaires mais aussi des conditions de saturation de l'ionisation, c'est-à-dire hors perturbation.

3.2 Vers les champs intenses UV et X

Cette thématique est d'autant plus actuelle que la production de champs intenses UV et X devient une réalité expérimentale. Depuis le synchrotron jusqu'au laser à électrons libres (LEL) en passant par la génération d'harmoniques, l'étude de la dynamique atomique en champ fort prend un essor majeur. Il s'agit pour les théoriciens de pouvoir répondre concrètement à cette perspective. Comme nous l'avons déjà évoqué au paragraphe concernant la première approximation de Born (cf. §1.3.2), les conditions de perturbation impliquent le remplacement du coefficient $a_i(t)$ intervenant dans l'amplitude de transition par 1. Celui-ci contient explicitement toute l'information sur la population de l'état initial (fondamental) au cours de l'interaction. Par ailleurs, il a été démontré que ces conditions restent valables tant que la probabilité totale d'ionisation ne dépasse pas 20%. Hors conditions de perturbation, il est impossible de s'affranchir du calcul de $a_i(t)$ qui nous est donné par la résolution des équations couplées (cf. §1.3.2). Dans le but d'étudier l'ionisation de l'hydrogène en champ intense, et hors conditions de résonance par des états intermédiaires, nous pouvons réduire cet ensemble à deux équations appelées « équations couplées réduites » (ECR). Elles nous permettent un calcul rapide de $a_i(t)$ tout au long de l'interaction. Son introduction dans un élément de transition CV2 standard, permet donc d'en étendre le domaine d'application au-delà des contraintes précitées.

3.2.1 Les équations couplées réduites

Nous regardons spécifiquement les transitions qui interviennent quand $\omega > I_p$ c'est-à-dire quand le couplage direct à un photon de l'état fondamental de l'hydrogène avec le continuum est prépondérant. Ces conditions induisent deux simplifications des équations couplées (1.21) : les termes de couplage entre l'état fondamental et tous les états intermédiaires mais également les couplages de type continu-continu sont négligés. En vertu de ces arguments, les équations couplées se réduisent alors à

$$\begin{cases} i\dot{a}_i(t) \simeq \int d\vec{k} a_{\vec{k}}(t) V_{i\vec{k}}(t) \exp(-i\delta_{\vec{k}i}t) \\ i\dot{a}_{\vec{k}}(t) \simeq a_i(t) V_{\vec{k}i}(t) \exp(i\delta_{\vec{k}i}t) \end{cases} \quad (3.1)$$

où l'on a $\delta_{\vec{k}i} = \varepsilon_{\vec{k}} - \varepsilon_i$. Puis, en intégrant directement la seconde équation de (3.1) et en injectant son expression dans la première, il vient

$$\dot{a}_i(t) \simeq - \int d\vec{k} V_{i\vec{k}}(t) \exp(-i\delta_{\vec{k}i}t) \int_0^t dt' V_{\vec{k}i}(t') \exp(i\delta_{\vec{k}i}t') a_i(t') \quad (3.2)$$

que l'on peut réécrire

$$\dot{a}_i(t) \simeq - \int_0^t dt' \int d\vec{k} V_{i\vec{k}}(t) V_{\vec{k}i}(t') \exp[i\delta_{\vec{k}i}(t' - t)] a_i(t') \quad (3.3)$$

A l'exception de l'exponentielle, tous les facteurs de l'intégrand sont des fonctions lentement variables de k . L'exponentielle est quant à elle oscillante et rapidement variable, ce qui rend sa contribution à l'intégrale nulle en moyenne. Cependant, dans le cas où $t \simeq t'$, sa contribution est au contraire maximum et c'est à cet instant également que nous allons considérer la contribution maximum de $a_i(t')$ en l'assimilant à $a_i(t)$. De fait, l'expression (3.3) devient

$$\dot{a}_i(t) \simeq -a_i(t) \int_0^t dt' \int d\vec{k} V_{i\vec{k}}(t) V_{\vec{k}i}(t') \exp[i\delta_{\vec{k}i}(t' - t)] \quad (3.4)$$

Finalement nous arrivons à

$$a_i(t) \simeq \exp \left(- \int d\vec{k} \int_0^t dt' V_{i\vec{k}}(t') \exp(-i\delta_{\vec{k}i}t') \int_{t'}^{t''} dt'' V_{\vec{k}i}(t'') \exp(i\delta_{\vec{k}i}t'') \right) \quad (3.5)$$

expression qui va nous servir dans l'amplitude de transition (1.27) où l'on a remplacé les fonctions d'onde finales par des fonctions d'onde Coulomb-Volkov [141]

$$T_{fi}^{RCV2-} = -i \int_0^\tau dt a_i(t) \langle \chi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle - \int_0^\tau dt \dot{a}_i(t) \langle \chi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (3.6)$$

et où l'indice supérieur R indique la renormalisation. Finalement, nous pouvons aboutir à la formule suivante par intégration par parties

$$T_{fi}^{RCV2-} = i \int_0^\tau dt a_i(t) \left[\frac{A^{-2}(t)}{2} + \vec{k} \cdot \vec{A}^-(t) \right] \langle \chi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (3.7)$$

Par ailleurs, nous nous sommes aussi intéressés au calcul de $a_{\vec{k}}(t)$ représentant la population de l'état final du continuum. Elle doit reproduire les transitions à un photon dans le cas de l'ionisation saturée et constituer un test simple pour vérifier notre approche en champ fort. Pour cela introduisons (3.5) dans le deuxième terme de (3.1) pour parvenir à

$$a_{\vec{k}}(t) \simeq -i \int_0^t dt' a_i(t') V_{\vec{k}i}(t') \exp(i\delta_{\vec{k}i} t') \quad (3.8)$$

où chacun des facteurs intervenant dans l'expression précédente s'écrit [141]

$$\left\{ \begin{array}{l} a_i(t) \simeq \exp \left\{ -(2Z)^6 \frac{4}{3} \int_0^{+\infty} dk \frac{k}{(k^2 + Z^2)^5} \frac{H_{\vec{k}i}(t)}{1 - \exp(-2\pi\nu)} \right. \\ \quad \times \exp \left[-4\nu \arctan \left(\frac{1}{\nu} \right) \right] \Big\} \\ V_{\vec{k}i}(t) = E(t) \left\langle \varphi_{\vec{k}}(\vec{r}) \left| \vec{r} \cdot \hat{\lambda} \right| \varphi_i(\vec{r}) \right\rangle \\ = -E(t) \frac{i(2Z)^{5/2} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 + i\nu)}{\pi (k^2 + Z^2)^3} k \cos \theta_k (i\nu + 1) \\ \quad \times \exp \left[-2\nu \arctan \left(\frac{k}{Z} \right) \right] \end{array} \right. \quad (3.9)$$

où $H_{\vec{k}i}(t)$ est une fonction complexe analytique. En utilisant un développement du champ électrique en série de Fourier $E(t) = E_0 \sum_{j=1}^{N=6} b_j \exp(i\omega_j t)$ nous pouvons arriver à une expression de $a_{\vec{k}}(t)$ [143]

$$\begin{aligned} a_{\vec{k}}(t) \simeq & -C \frac{\Gamma(2 + i\nu) k \cos \theta_k \exp \left\{ \nu \left[\frac{\pi}{2} - 2 \arctan \left(\frac{1}{\nu} \right) \right] \right\}}{(k^2 + Z^2)^3} \\ & \times E_0 \sum_{j=1}^{N=6} b_j \int_0^t dt' a_i(t') \exp [i(\omega_j + \delta_{\vec{k}i}) t'] \end{aligned} \quad (3.10)$$

L'utilisation de $a_i(t)$ dans l'amplitude de transition CV2 va être dénommée RCV2 par la suite et l'exploitation directe de $a_{\vec{k}}(t)$ sera ECR⁵.

3.2.2 Application à l'ionisation d'un cristal présentant un défaut de structure

Des expériences récentes montrent que l'ionisation d'un isolant cristallin par une impulsion brève d'un laser Titane-Saphir produit des électrons éjectés d'une large gamme d'énergie. En particulier, une grande quantité d'électrons de haute énergie a été observée [144]. Bien que la plupart de ces électrons soient issus de la bande de valence, une telle transition requiert l'absorption simultanée d'au moins deux photons. Cependant, si des défauts sont présents dans la structure cristalline, un photon peut être nécessaire pour permettre le franchissement du gap entre ce défaut et la bande de conduction et ainsi mener à une forte augmentation du transfert d'électrons. Avec des intensités laser suffisantes, des électrons de haute énergie peuvent ainsi être produits par l'absorption subséquente d'un grand nombre de photons. Afin d'évaluer l'efficacité d'un tel transfert, un modèle simple a été mis en place [141]. L'état électronique du défaut est représenté par un atome hydrogénoïde dont le potentiel d'ionisation est le gap de ce défaut. Celui-ci est donnée à environ $1 \text{ eV} \simeq 3,675 \cdot 10^{-2} \text{ u.a.}$ et la charge nucléaire le représentant est définie à $Z = 0,2711$. Le transfert est donc modélisé par l'ionisation d'un atome initialement dans son état fondamental et la bande de conduction est considérée comme étant le continuum de l'atome. De plus les caractéristiques du laser sont prises pour être le plus proche possible de l'expérience soit $I = 1,71 \cdot 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$, correspondant à un champ électrique de $E_0 = 6,989 \cdot 10^{-3} \text{ u.a.}$, une durée d'impulsion de $\tau = 1544,32 \text{ u.a.}$ soit $\tau \simeq 37 \text{ fs}$ correspondant à 14 cycles optiques et un photon d'énergie $\omega = 5,696 \cdot 10^{-2} \text{ u.a.}$ soit $\omega = 1,55 \text{ eV}$. Afin de s'assurer de la validité de telles méthodes, des résultats similaires ont été fournis par H. Bachau avec un code résolvant l'ESDT sur une base de B-splines (dénommé également ESDT dans ce qui suit). Le calcul des densités de probabilité électronique calculées par les trois méthodes sont reportées sur la FIG. 3.1 suivante, et nous est donné par :

$$\begin{cases} \mathcal{D}^{RCV2^-}(\varepsilon) = k \left| T_{fi}^{RCV2^-} \right|^2 \\ \mathcal{D}^{ECR}(\varepsilon) = k \int d\Omega_{\vec{k}} |a_{\vec{k}}(\tau)|^2 \end{cases} \quad (3.11)$$

⁵Rappel : Equations couplées réduites

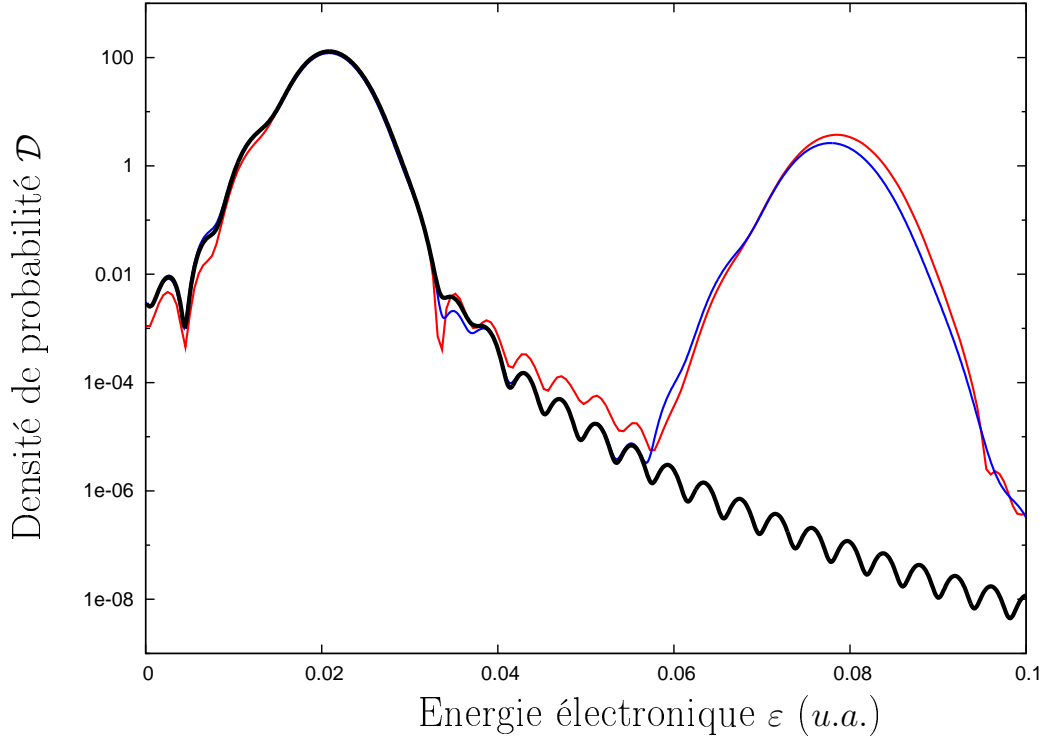


FIG. 3.1 – Densité de probabilité d'ionisation d'un cristal présentant un défaut de structure, calculée par ESDT (rouge), RCV2 (bleu) et ECR (noir).

dont on obtient une expression plus détaillée en développant (3.6) et (3.10)

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{D}^{ECR}(\varepsilon) = \frac{8}{3} \frac{(2Z)^5 k^3 \exp \left[-4\nu \arctan \left(\frac{1}{\nu} \right) \right]}{(k^2 + Z^2)^6} \frac{\nu(1 + \nu^2)}{1 - \exp(-2\pi\nu)} \\ \quad \times E_0^2 \left| \int_0^\tau dt a_i(t) \sum_{j=1}^{N=6} b_j \exp [i(\omega_j + \delta_{ki})t] \right|^2 \\ \mathcal{D}^{RCV2^-}(\varepsilon) = k \left| \int_0^\tau dt a_i(t) \left[\frac{A^{-2}(t)}{2} + \vec{k} \cdot \vec{A}^-(t) \right] \langle \chi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \right|^2 \end{array} \right. \quad (3.12)$$

Nous pouvons constater que les trois approches s'accordent bien pour le premier pic ATI. Cependant, il est clair que les prédictions ECR sont plus proches de celles RCV2⁶ que de celles ESDT. On peut remarquer de petites

⁶Rappel : Renormalized Coulomb-Volkov

différences entre les prédictions ESDT et les autres en particulier sur l'aile gauche du premier pic, près du seuil d'ionisation. Ceci peut être attribué à la faible influence des états de Rydberg qui sont ignorés dans les traitements RCV2 et ECR. De plus, le fond continu des spectres est identique pour RCV2 et ECR jusqu'au pied du second pic. Ceci confirme le fait qu'il est complètement généré par des transitions à un photon issu des ailes de ce pic. Bien que les trois méthodes soient en accord pour la transition à un photon elles diffèrent pour le cas à deux photons. L'essentiel des désaccords sur la magnitude du fond continu entre les pics mais aussi du deuxième pic entre RCV2 et ESDT peut être attribuée à la légère différence de définition du champ laser. En effet, dans le cas ESDT, il est calculé par rapport à la dérivée d'un potentiel où intervient explicitement le profil de l'enveloppe f , et de la forme

$$A(t) = \frac{E_0}{\omega} f(t - t_0, \tau) \cos(\omega t + \varphi) \quad (3.13)$$

De ce fait, le champ laser présente un terme supplémentaire par rapport à notre définition. Dans notre cas, nous partons plutôt de l'expression du champ que nous intégrons pour aboutir au potentiel. Cependant, nous remarquons que pour des photons d'énergie plus grande que le potentiel d'ionisation, il est très facile d'obtenir des résultats précis sur l'ionisation en champ bref en utilisant ECR. La mise en œuvre de ce type d'approche se justifie d'autant qu'avec de telles intensités, les transitions à deux photons sont deux ordres de grandeur au-dessous de la transition à un photon. Elles peuvent donc concurrencer des méthodes plus sophistiquées si l'on se focalise uniquement sur le premier pic d'ionisation. Dès que l'on s'intéresse aux ordres supérieurs, le recours à une méthode de type RCV2 s'avère tout aussi prometteuse en particulier si les intensités deviennent suffisantes pour que les transitions à deux photons (voire à un nombre plus élevé de photons), deviennent du même ordre de grandeur que la transition à un photon. Il faut toutefois se souvenir que le dépeuplement de l'état fondamental est calculé à partir d'une transition à un photon. Ainsi, les prédictions de RCV2 resteront très bonnes tant que la dynamique sera dominée par ce type de transition.

3.3 Vers les petites énergies de photon

Dans l'optique d'utiliser des énergies de photon de plus en plus petites afin de se rapprocher de ce qui est produit dans le domaine UV, nous nous plaçons à présent dans le cas où $\omega < \frac{I_p}{2}$. Il devient alors nécessaire de regarder en détail les transitions multiphotoniques entre états liés de l'hydrogène et cette

étude constitue un test fort de la validité d'un développement Coulomb-Volkov. Dans ce cadre, nous nous sommes intéressés à l'excitation des deux premiers états liés. Nous pouvons d'ores et déjà avoir une idée du spectre de probabilité car la symétrie des fonctions d'onde va nous imposer des ordres de transition dipolaire électrique pairs ou impairs. L'objectif est ensuite d'introduire ce travail dans une théorie plus générale de l'ionisation de l'hydrogène, sur le modèle MCV2⁷ déjà développé dans [23]. Dans ce cas, il s'agit d'introduire explicitement l'excitation des premiers états par des transitions à un photon de type Born I et d'énergie proche de $\frac{I_p}{2}$ dominant l'excitation des autres états intermédiaires. Puis, décrire l'ionisation multiphotonique subséquente à partir de chacun de ces états par un traitement CV2. L'utilisation d'énergie de photons telle que $\omega < \frac{I_p}{2}$ remplacerait le traitement Born I par l'excitation multiphotonique décrite à l'aide d'un calcul CV2.

3.3.1 Probabilité d'excitation multiphotonique de $H(1s)$ vers $H(2p)$ ou $H(2s)$

Nous allons dériver l'expression de l'amplitude (2.31) pour les transitions de l'état initial $H(1s)$ vers les états finaux $H(2p)$ ou $H(2s)$. Pour cela, exprimons les parties spatiales des fonctions d'onde intervenant dans le calcul

$$\begin{cases} \varphi_i(\vec{r}) = \varphi_{1s}(\vec{r}) = R_{10}(r)\mathcal{Y}_0^0(\theta, \phi) \\ \varphi_f(\vec{r}) = \varphi_{2p_0}(\vec{r}) = R_{21}(r)\mathcal{Y}_1^0(\theta, \phi) \\ \varphi_f(\vec{r}) = \varphi_{2s}(\vec{r}) = R_{21}(r)\mathcal{Y}_0^0(\theta, \phi) \end{cases} \quad (3.14)$$

où l'expression de chacune des parties radiales et des harmoniques sphériques nous est donnée par [145]

$$\begin{cases} R_{10}(r) = 2Z^{\frac{3}{2}} \exp(-Zr) \\ R_{21}(r) = \frac{Z^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \left(1 - \frac{Zr}{2}\right) \exp\left(-\frac{Zr}{2}\right) \\ \mathcal{Y}_0^0(\theta, \phi) = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} \\ \mathcal{Y}_1^0(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} \cos \theta \end{cases} \quad (3.15)$$

⁷Rappel : Modified Coulomb-Volkov

Sans oublier les énergies (où pour l'hydrogène $Z = 1$) en *u.a.*

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_{1s} = -\frac{Z}{2} = -0,5 \\ \varepsilon_{2s} = \varepsilon_{2p} = -\frac{Z}{8} = -0,125 \\ \varepsilon_{2s} - \varepsilon_{1s} = \frac{3Z^2}{8} = 0,375 \end{array} \right. \quad (3.16)$$

Le calcul de l'élément de transition pour chacun des cas d'excitation de $H(2s)$ ou $H(2p)$ est directement lié au calcul de la fonction $g^\pm(t)$ (cf. (2.32)). Il est d'ailleurs important de noter que si on s'intéresse à l'excitation, il n'est plus pertinent de différencier le caractère entrant où sortant des fonctions d'onde. Le calcul suivant va concerner l'amplitude d'excitation de $H(2s)$ dénommée T_{1s-2s}^{CV2+} , tout en gardant à l'esprit que T_{1s-2s}^{CV2-} doit nous donner exactement les mêmes résultats. Ainsi, en supprimant l'indice « + » pour plus de simplicité, il vient en introduisant les définitions (3.15) dans (2.32)

$$g_{2s}(t) = \int d\vec{r} \exp\left(i\vec{A}(t) \cdot \vec{r}\right) R_{20}(r) R_{10}(r) \mathcal{Y}_0^0(\theta, \phi) \mathcal{Y}_0^0(\theta, \phi) \quad (3.17)$$

D'après les définitions (3.15) l'expression précédente devient

$$g_{2s}(t) = \frac{Z^3 \sqrt{2}}{4\pi} \int d\vec{r} \left(1 - \frac{Zr}{2}\right) \exp\left(i\vec{A}(t) \cdot \vec{r} - \frac{3Zr}{2}\right) \quad (3.18)$$

Regardons à présent l'intégration spatiale que l'on sépare en deux et en posant $\alpha = \frac{3Z}{2}$

$$I_1 = \int d\vec{r} \exp\left(i\vec{A}(t) \cdot \vec{r} - \alpha r\right) - \frac{Z}{2} \int d\vec{r} r \exp\left(i\vec{A}(t) \cdot \vec{r} - \alpha r\right) \quad (3.19)$$

Le calcul du premier terme de l'expression précédente nous est donné dans l'annexe C

$$I'_1 = \frac{8\pi\alpha}{(\alpha^2 + A^2(t))^2} \quad (3.20)$$

Ce calcul est très utile car les autres formes intégrales auxquelles nous allons arriver pourront se définir en fonction de (3.20). Ainsi, le second terme de (3.19) s'écrit

$$I_1'' = -\frac{\partial}{\partial \alpha} I_1' \quad (3.21)$$

qui devient

$$I_1'' = \frac{8\pi}{(\alpha^2 + A^2(t))^3} \left[(\alpha^2 + A^2(t)) \left(\alpha + \frac{Z}{2} \right) - 2Z\alpha^2 \right] \quad (3.22)$$

En remplaçant (3.22) et (3.20) dans (3.19) puis le tout dans (3.18) nous déduisons une expression de T_{1s-2s}^{CV2}

$$T_{1s-2s}^{CV2} \simeq -i \frac{Z^5 \sqrt{2}}{4} \int_0^\tau dt \exp \left(i \frac{3Z^2}{8} t \right) \frac{\left[(\alpha^2 + A^2(t)) \left(\alpha + \frac{Z}{2} \right) - 2Z\alpha^2 \right]}{(\alpha^2 + A(t)^2)^3} \quad (3.23)$$

En suivant la même démarche pour l'excitation de $H(2p)$, calculons

$$g_{2p}(t) = \int d\vec{r} \exp \left(i \vec{A}(t) \cdot \vec{r} \right) R_{21}(r) R_{10}(r) \mathcal{Y}_1^0(\theta, \phi) \mathcal{Y}_0^0(\theta, \phi) \quad (3.24)$$

qui se réécrit en vertu de (3.15)

$$g_{2p}(t) = \frac{Z^4}{4\pi\sqrt{2}} \int d\vec{r} r \cos \theta \exp \left(i \vec{A}(t) \cdot \vec{r} - \alpha r \right) \quad (3.25)$$

dont la partie intégrale peut s'exprimer comme

$$I_2 = \left(-i \frac{\partial}{\partial A(t)} \right) I_1' \quad (3.26)$$

Cette dernière expression devient tout simplement

$$I_2 = \frac{32i\pi A(t)\alpha}{(\alpha^2 + A^2(t))^3} \quad (3.27)$$

D'où nous tirons l'expression

$$T_{1s-2p}^{CV2} \simeq \frac{3Z^4\alpha}{\sqrt{2}} \int_0^\tau dt \exp \left(i \frac{3Z^2}{8} t \right) \frac{A(t)}{(\alpha^2 + A^2(t))^3} \quad (3.28)$$

Dès à présent le développement de ces amplitudes de transition nous mène au calcul de la probabilité totale d'ionisation par la formule très simple

$$\mathcal{P} = |T|^2 \quad (3.29)$$

Les probabilités d'excitation s'écrivent donc

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{P}_{1s-2s}^{CV2} = \frac{Z^{10}}{8} \left| \int_0^\tau dt \exp\left(i\frac{3Z^2}{8}t\right) \frac{\left[(\alpha^2 + A^2(t))\left(\alpha + \frac{Z}{2}\right) - 2Z\alpha^2\right]}{(\alpha^2 + A^2(t))^3} \right|^2 \\ \mathcal{P}_{1s-2p}^{CV2} = \frac{9Z^8\alpha^2}{2} \left| \int_0^\tau dt \exp\left(i\frac{3Z^2}{8}t\right) \frac{A(t)}{(\alpha^2 + A^2(t))^3} \right|^2 \end{array} \right. \quad (3.30)$$

Le calcul de ces probabilités a donné lieu à la conception de deux codes dont nous avons confronté les résultats à ceux fournis par le code ESDT d'E. Cormier.

3.3.2 Résultats

Nous avons reporté sur les FIG. 3.2 et FIG. 3.3 les résultats en fonction du quotient $\frac{\delta}{\omega}$, où $\delta = \varepsilon_{2s} - \varepsilon_{1s} = 0,375 \text{ u.a.}$ et ω est l'énergie du photon de l'impulsion laser incidente de 30 cycles optiques ; ce qui permet de conserver une largeur spectrale relative $\frac{\Delta\omega}{\omega}$ constante quelle que soit ω . Chacun des graphes correspond à une valeur particulière de l'amplitude crête du champ électrique du laser à savoir : $E_0 = 10^{-4} \text{ u.a.}$ pour les FIG. 3.2 et FIG. 3.3 a), $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ pour les FIG. 3.2 et FIG. 3.3 b) et $E_0 = 10^{-2} \text{ u.a.}$ pour les FIG. 3.2 et FIG. 3.3 c), définissant les maxima d'intensité suivants $I = 3,51.10^8 \text{ W.cm}^{-2}$, $I = 3,51.10^{10} \text{ W.cm}^{-2}$ et $I = 3,51.10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. Comme nous nous y attendions, des pics principaux de probabilités de transition apparaissent pour des ordres pairs et impairs selon que l'on satisfait les conditions suivantes

$$\left\{ \begin{array}{lll} n\omega = \delta & \text{avec} & n \text{ pair pour l'excitation de } H(2s) \\ n\omega = \delta & \text{avec} & n \text{ impair pour l'excitation de } H(2p_0) \end{array} \right. \quad (3.31)$$

Cependant, ces conditions sont applicables uniquement lorsque deux niveaux (i.e. $H(1s)$ et $H(2s)$ ou $H(2p)$) sont couplés. En comparant les spectres CV2 avec ESDT, on voit clairement apparaître dans ces derniers des pics ne satisfaisant pas ces conditions. Ces pics secondaires correspondent à des transitions quasi-résonantes vers d'autres états intermédiaires, suivies par des transitions vers l'état final considéré. Ils sont rendus possibles par la largeur

spectrale du laser, contrepartie de la durée limitée de l'impulsion. Dans ce cas, des photons localisés sur les ailes du spectre peuvent contribuer à l'excitation. Une analyse en fin de chapitre (cf. §3.4) expliquera pourquoi de telles différences existent. Dans les sections qui suivent, les résultats ESDT présentent un champ identique à celui employé dans CV2 et nous regardons le détail des processus mis en jeu.

Excitation multiphotonique depuis $H(1s)$ vers $H(2p_0)$

Les seuls pics prédits par CV2 correspondent à l'absorption directe d'un nombre impair de photons. Tant que les transitions se produisent dans le régime perturbatif, la hauteur de chaque pic doit être proportionnelle à I^n ou bien E_0^{2n} où n est le nombre de photons absorbés. C'est exactement ce qui peut être vérifié pour les premiers et seconds pics. Dans toutes les figures, l'accord entre ESDT et CV2 est généralement bon. Sur la FIG. 3.2 a), l'intensité est si faible que seul le pic à un photon est présent. Sur la FIG. 3.2 c), une nette différence entre les deux calculs apparaît pour le troisième et quatrième pic correspondant à une transition à cinq et sept photons respectivement. L'énergie des photons mis en jeu pour le troisième pic est de $0,075 \text{ u.a.}$ et l'absorption d'un photon supplémentaire conduit à l'excitation d'un état $H(3s)$. Ainsi, la séparation apparaissant dans le spectre ESDT est très certainement due à un effet Stark (« Stark splitting ») aussi dénommé séparation Autler-Townes [146], conséquence du couplage dipolaire fort entre les états $H(3s)$ et $H(2p)$. L'efficacité de ce dépeuplement à un photon est proportionnelle à \sqrt{I} . Une séparation similaire a été prédite récemment pour l'ionisation d'un positronium induite par une impulsion laser brève [147]. De plus, l'absorption d'un septième photon mène au continuum. Ces deux derniers processus sont complètement pris en compte dans le traitement ESDT au contraire des calculs CV2 (cf. §3.4). Ils sont très certainement responsables du dépeuplement important de l'état $H(2p)$ quand à la fois, l'intensité du laser et la population de l'état $H(2p)$ sont suffisamment élevées. La situation est beaucoup plus compliquée pour le quatrième pic car de nombreux autres couplages plus difficiles à identifier sont impliqués.

Excitation multiphotonique depuis $H(1s)$ vers $H(2s)$

L'excitation du niveau $H(2s)$ est sensiblement différente de celle de $H(2p)$. Les intensités laser considérées sont identiques dans les deux cas mais les probabilités apparaissent beaucoup plus faibles. Comme précédemment, les seuls pics prédits par CV2 sont les pics principaux correspondant à l'absorption directe d'un nombre pair de photons et comme précédemment, la hauteur des

pics suit la loi de puissance. Du fait des très faibles probabilités, ESDT reproduit difficilement le fond continu issu des ailes du premier pic. Au-dessus de $\frac{\delta}{\omega} = 4,2$, CV2 ne prédit correctement que les pics principaux, tandis que des imprécisions liées à l'intégration numérique sur le temps apparaissent dans la description du fond. De plus, les hauteurs de chaque premier pic principal ESDT et CV2 diffèrent d'un facteur 2 approximativement. Cette anomalie peut également être observée sur les FIG. 3.3 b) et c), indiquant encore une fois que les processus indirects qui contribuent au peuplement de $H(2s)$ sont absents de CV2. Dans chacune des figures, de nombreuses sous-structures apparaissent dans les résultats ESDT. Elles proviennent de processus multiphotoniques complexes impliquant des états intermédiaires excités par des photons localisés sur les ailes de la largeur spectrale. En particulier, à $\frac{\delta}{\omega} \simeq 0,845$ les calculs ESDT présentent un pic secondaire dont la hauteur varie comme I^2 , signature d'un processus à deux photons. Si l'on regarde l'énergie du photon impliqué (au centre du pic), elle est de $\omega = 0,4438 \text{ u.a.}$ qui est très proche de $0,4444 \text{ u.a.}$ énergie requise pour exciter l'état $H(3p)$. Ainsi, ce pic peut être identifié comme le résultat de l'excitation de $H(3p)$ suivie par l'émission d'un photon d'énergie $0,0694 \text{ u.a.}$ Cette dernière transition est stimulée par l'aile de basse énergie du spectre et mène à l'état final $H(2s)$. Cependant, l'énergie du premier photon localisé très loin dans l'aile à haute énergie du spectre laser explique la faible magnitude de ce pic. Ce scénario est confirmé par un calcul Born au deuxième ordre (Born II) fourni par V.D. Rodriguez et reproduisant les prédictions ESDT pour ce pic (cf. FIG. 3.3 a), b) et c)). L'absence d'un tel processus dans une approche CV2 standard pourrait néanmoins être corrigée par un développement de type MCV2 adapté [23]. L'identification de tous les processus contribuant à chacun des pics secondaires s'avère difficile mais pourrait être rendue plus simple par comparaison avec les prédictions MCV2 où la contribution de chaque nouvel état intermédiaire est clairement identifiable.

3.3.3 Effet de l'enveloppe sur l'excitation

Pour accréditer l'idée d'une dynamique électronique fondée sur des transitions rendues possibles par des photons des ailes de la largeur spectrale, nous avons exploité le code ESDT en utilisant une impulsion d'enveloppe gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est identique à celle d'une impulsion en \sin^2 et d'intensité $I = 3,51.10^{10} \text{ W.cm}^{-2}$. On voit parfaitement (cf. FIG. 3.4 b)) que tous les processus de transitions secondaires évoqués au paragraphe précédent disparaissent. Ainsi l'enveloppe de l'impulsion joue un

rôle déterminant dans la dynamique électronique.

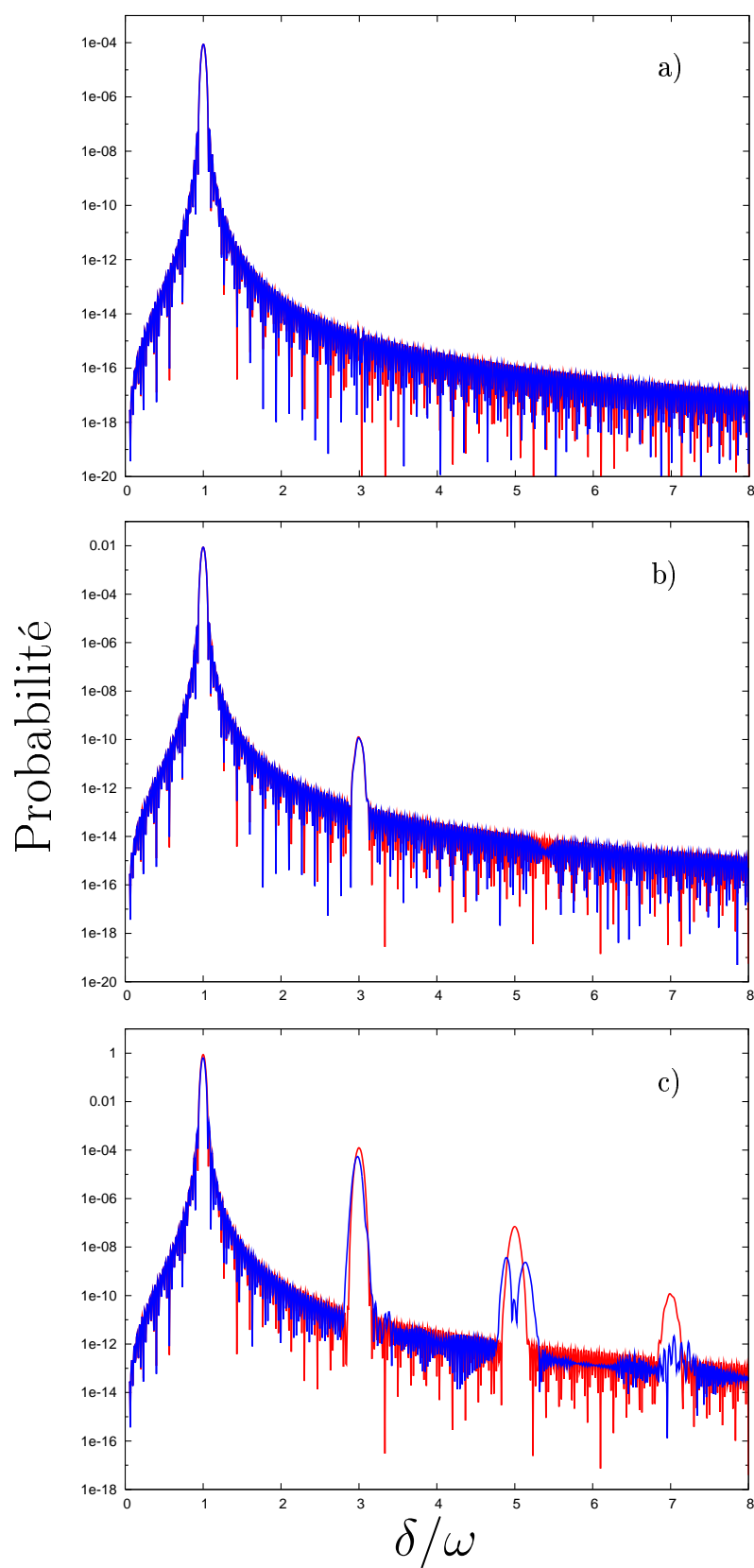


FIG. 3.2 – Probabilité d'exciter l'état $H(2p_0)$ en fonction de $\frac{\delta}{\omega}$ calculée par CV2 (rouge) et ESDT (bleu).

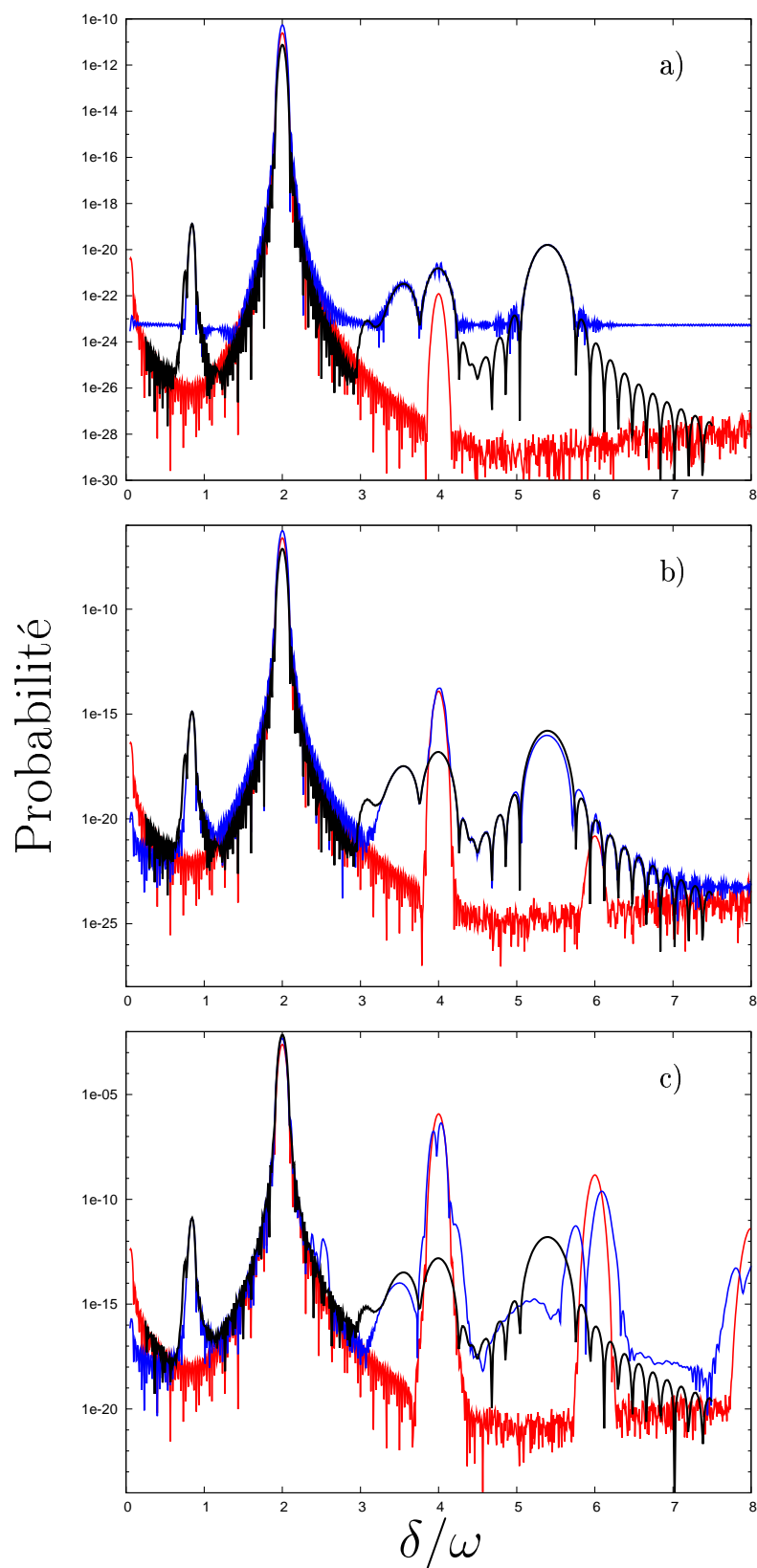


FIG. 3.3 – Probabilité d'exciter l'état $H(2s)$ en fonction de $\frac{\delta}{\omega}$ calculée par CV2 (rouge), ESDT (bleu) et Born II (noir).

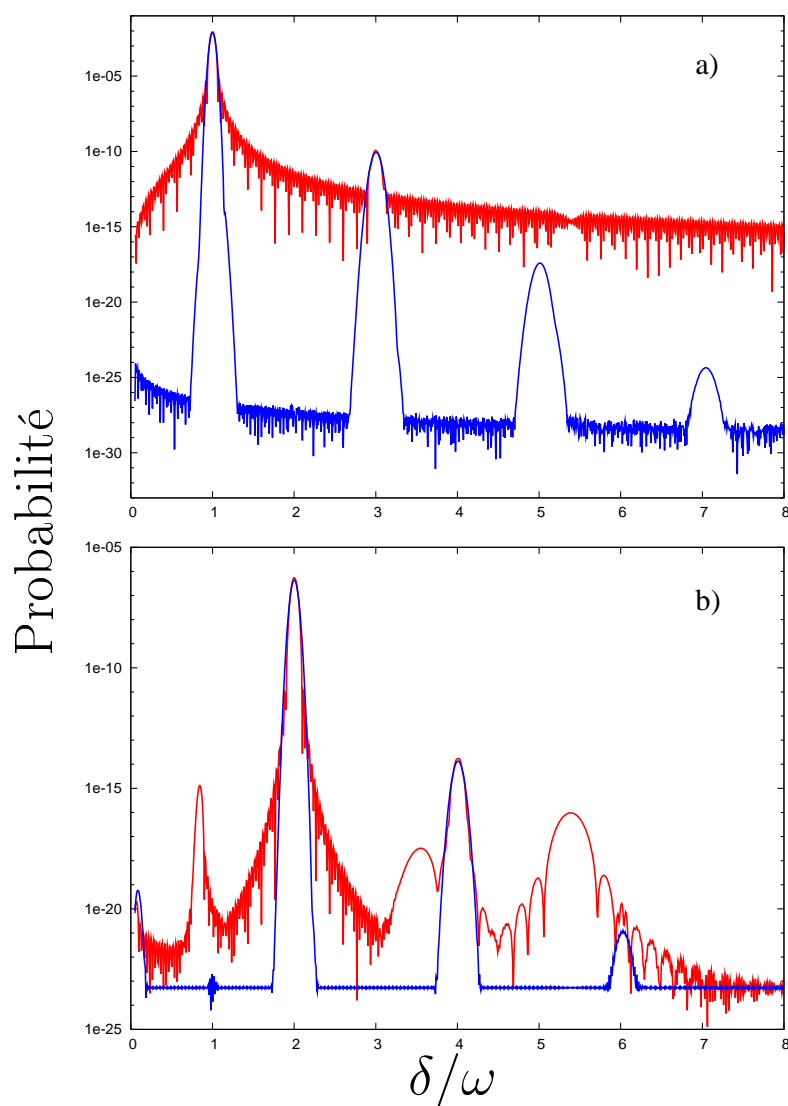


FIG. 3.4 – Probabilité d'exciter l'état $H(2p)$ a), et $H(2s)$ b), en fonction de $\frac{\delta}{\omega}$ calculée par ESDT avec une enveloppe \sin^2 (rouge) et gaussienne (bleu).

3.4 Comparaison des développements Born et CV2 en séries de perturbation

Afin de mieux comprendre les mécanismes mis en jeu par une description Coulomb-Volkov, et en particulier pourquoi les états intermédiaires résonants doivent explicitement être pris en compte, il est intéressant de la comparer à un développement de Born en séries de perturbation (BSP).

3.4.1 Développement de Born en série de perturbation

En conditions de perturbation, les ordres n de BSP correspondent à des transitions à n photons. Afin de bien identifier chaque processus, débutons par le développement de la matrice T en itérant p fois l'équation intégrale de l'opérateur d'évolution [145]

$$T_{fi} = \sum_{p=1} T_{fi}^{(p)} \quad (3.32)$$

où chaque ordre p est connu par la formule

$$\begin{aligned} T_{fi}^{(p)} = (-i)^p \sum_{j_1} \sum_{j_2} \cdots \sum_{j_p} \int_0^\tau dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \cdots \int_0^{t_{p-1}} dt_p \\ \langle \Phi_f^-(t_1) | V(t_1) | \Phi_{j_1}(t_1) \rangle \langle \Phi_{j_1}(t_2) | V(t_2) | \Phi_{j_2}(t_2) \rangle \\ \cdots \langle \Phi_{j_{p-1}}(t_p) | V(t_p) | \Phi_{j_p}(t_p) \rangle \end{aligned} \quad (3.33)$$

Puis, écrivons le champ laser sous la forme

$$\vec{E}(t) = \alpha \vec{E}_0(t) = \alpha E_0 \sin(\omega t + \varphi) f(t) \hat{\lambda} \quad (3.34)$$

et remplaçons $V(t)$ par $\vec{r} \cdot \vec{E}(t)$ dans le second ordre de (3.33)

$$\begin{aligned} T_{fi}^{(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt \int_0^t dt' \int d\vec{r} \Phi_f^*(\vec{r}, t) \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \sum_j \Phi_j(\vec{r}, t) \\ \times \int d\vec{r}' \Phi_j^*(\vec{r}', t') \vec{r}' \cdot \vec{E}_0(t') \Phi_i(\vec{r}', t') \end{aligned} \quad (3.35)$$

que nous pouvons mettre sous la forme plus compacte (cf. Annexe E)

$$T_{fi}^{(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) \Gamma_{ji}(t) \quad (3.36)$$

où l'on a

$$\Gamma_{ji}(t) = \int_0^t dt' E_0(t') D_{ji}(t') \quad (3.37)$$

et chaque D_{ji} étant défini comme l'élément de matrice dipolaire électrique couplant les états i et j tels que

$$D_{ji}(t) = \left\langle \Phi_j(t) \left| \vec{r} \cdot \hat{\lambda} \right| \Phi_i(t) \right\rangle \quad (3.38)$$

A présent, nous allons développer le deuxième ordre correspondant à un développement CV2 standard afin de relever précisément les différences.

3.4.2 Développement CV2 en série de perturbation

En suivant la même démarche, remplaçons l'expression du champ dans (2.30) pour laquelle l'état final est un état du continuum atomique, ce qui signifie $\vec{k} \neq \vec{0}$, par l'expression (3.34)

$$\begin{aligned} T_{fi}^{CV2-} = & -i \int_0^\tau dt \exp \left[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t + i\vec{k} \cdot \int_\tau^t dt' \alpha \vec{A}_0^-(t') \right] \\ & \times \int d\vec{r} \varphi_f^{-*}(\vec{r}) \exp \left(-i\alpha \vec{A}_0^-(t) \cdot \vec{r} \right) \alpha \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \varphi_i(\vec{r}) \end{aligned} \quad (3.39)$$

Pour pouvoir développer en série de perturbation du paramètre α , réécrivons l'équation précédente plus convenablement

$$\begin{aligned} T_{fi}^{CV2-} = & -i \int_0^\tau dt \exp [i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \int d\vec{r} \varphi_f^{-*}(\vec{r}) \\ & \times \exp \left[-i\alpha \left(\vec{A}_0^-(t) \cdot \vec{r} - \vec{k} \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}_0^-(t') \right) \right] \alpha \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \varphi_i(\vec{r}) \end{aligned} \quad (3.40)$$

Puis le développement en série de Taylor de l'exponentielle mène à

$$\begin{aligned} T_{fi}^{CV2-} = & -i \int_0^\tau dt \exp [i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \int d\vec{r} \varphi_f^{-*}(\vec{r}) \\ & \times \left[1 + \sum_{p=1}^{\infty} \frac{(-i)^p \alpha^p}{p!} \left(\vec{A}_0^-(t) \cdot \vec{r} - \vec{k} \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}_0^-(t') \right)^p \right] \alpha \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \varphi_i(\vec{r}) \end{aligned} \quad (3.41)$$

et réduisons l'expression précédente au deuxième ordre ($p = 1$)

$$T_{fi}^{CV2-(2)} = -i \int_0^\tau dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \int d\vec{r} \varphi_f^{-*}(\vec{r}) \times \left(\vec{A}_0^-(t) \cdot \vec{r} - \vec{k} \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}_0^-(t') \right) \alpha \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \varphi_i(\vec{r}) \quad (3.42)$$

qui devient, en supposant des transitions entre états liés, c'est-à-dire en posant $\vec{k} = \vec{0}$ en moyenne

$$T_{fi}^{CV2-(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_i)t] \times \int d\vec{r} \varphi_f^{-*}(\vec{r}) \vec{r} \cdot \vec{A}_0^-(t) \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \varphi_i(\vec{r}) \quad (3.43)$$

Finalement, on peut montrer (cf. Annexe E) que l'expression précédente devient

$$T_{fi}^{CV2-(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) \tilde{\Gamma}_{ji}(t) \quad (3.44)$$

avec dans ce cas

$$\tilde{\Gamma}_{ji}(t) = -D_{ji}(t) \int_0^t dt' E_0(t') \quad (3.45)$$

En rapprochant les expressions (3.44) avec (3.36) mais également (3.45) avec (3.37) une conclusion s'impose : $\tilde{\Gamma}_{ji}(t)$ ne possède pas la « mémoire » des transitions vers chacun des états intermédiaires j pour $t' \in [0, t]$ tout au long de l'interaction avec le champ laser. Tout se passe comme si chaque transition par chacun de ces états j se produisait durant un intervalle de temps infinitésimal, interdisant de fait toute résonance. De telles résonances sont précisément décrites par le second terme du développement au second ordre de (3.36) (cf. Annexe E).

3.5 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que l'application d'une méthode RCV2 à l'ionisation de l'hydrogène atomique en conditions de forte intensité laser et CV2 standard pour l'excitation multiphotonique des premiers états liés donne de très bons résultats. Dans un premier temps, l'introduction du dépeuplement de l'état fondamental dans l'amplitude de transition au moyen

d'un coefficient calculé à partir des ECR à deux niveaux est pertinente tant que la dynamique du système est dominée par le couplage à un photon entre ces deux états. Dans un deuxième temps, le calcul des probabilités d'excitation multiphotonique de $H(2s)$ et $H(2p_0)$ par une méthode CV2 standard produit également de très bons résultats et peut s'avérer un outil intéressant pour la compréhension du détail des processus impliqués. Nous avons également mis en lumière le rôle prépondérant de l'enveloppe temporelle sur la dynamique d'excitation via d'autres états rendus accessibles par des photons localisés sur les ailes de la largeur spectrale. De plus, nous avons démontré que l'absence d'un terme dans le développement CV2 au deuxième ordre est directement relié à l'absence de transitions par des états intermédiaires résonants. Nous comprenons alors pourquoi leur contribution n'est pas prise en compte par une approche CV2 et accrédite l'idée d'employer un développement MCV2 quand ces états sont impliqués. Ainsi, la combinaison d'une approche RCV2 avec une méthode du type MCV2 pourrait donner lieu à une description de l'ionisation sur une large gamme d'intensités et d'énergies de photon, en incluant une partie des états intermédiaires. Ceci est d'autant plus réalisable que des calculs systématiques d'amplitude de transition entre états liés peuvent être mis en place. Le traitement se rapprocherait de fait d'une méthode globale. Cependant, il faudrait toujours conserver ce qui fait l'une des spécificités essentielles d'une approche CV2 à savoir la très grande rapidité des calculs. Si une description plus globale tend à effacer ce caractère pour entrer sur des échelles de temps comparables à celles d'un code ESDT cela donnerait lieu à une compétition entre un traitement CV2 approché et une méthode globale. Dans ce cas, on préférera l'utilisation d'une méthode globale, sauf dans le cas de systèmes plus complexes.

Conclusion

LE travail fourni dans cette première partie nous a permis de poser des jalons pour une étude plus approfondie fondée sur l'utilisation de la méthode Coulomb-Volkov. Après avoir revu les grands principes de l'interaction laser-atome, en particulier les transitions multiphotoniques pouvant intervenir entre états atomiques, et posé le contexte de notre approche, nous nous sommes orientés vers deux grands axes d'étude de l'hydrogène. Dans un premier temps, nous avons regardé comment exporter notre méthode à l'ionisation de l'hydrogène hors conditions de perturbation. Ceci présupposait de calculer à chaque instant de l'interaction, la population de l'état fondamental. En travaillant à des énergies de photon telles que l'ionisation à un photon domine, cette population peut être facilement calculée à l'aide d'un ensemble de deux équations couplées réduites. L'introduction de ce calcul dans une description multiphotonique de l'ionisation mène à une bonne description de la densité de probabilité des électrons éjectés et en particulier permet de décrire la production d'électrons de haute énergie dans la bande de conduction d'un cristal et produits à partir d'un défaut assimilé à un atome d'hydrogène. Par ailleurs, dans les conditions d'intensité où l'ionisation reste dominée par la transition à un photon, nous avons développé le calcul de la densité de probabilité d'atteindre le continuum des équations couplées réduites, et vérifié que le premier pic d'ionisation s'accordait avec des calculs de type ESDT. Nous avons ainsi montré que si l'intensité dépassait les conditions de perturbations, sans toutefois devenir très élevée, la dynamique générale d'ionisation à un photon pouvait tout à fait être décrite par un calcul très simple de ce type. Dans un deuxième temps, nous avons appliqué le calcul des amplitudes de transitions à l'excitation multiphotonique des états $2s$ et $2p$ de l'hydrogène. Dans ce cas, nous reproduisons très bien les pics de transition principaux aux ordres pairs et impairs respectivement. Par comparaison avec des résultats ESDT, nous remarquons que des structures

secondaires directement liées aux états atomiques atteints par des photons de la largeur spectrale du laser ne sont pas décrites. Cependant, parmi tous les processus intervenant lors de l'excitation, nous sommes en mesure d'identifier et d'évaluer clairement la contribution de ceux que nous décrivons par un traitement CV2. Nous constatons que le cas monoélectronique est tout à fait adapté à une description multiphotonique CV2 lorsque la dynamique est dominée par des transitions directes sans états intermédiaires résonnants. Nous pouvons ainsi analyser finement quels sont les processus en jeu ainsi que leur contribution à la dynamique générale. A présent, l'idée est de regarder comment nous pouvons exporter ce type de traitement à un système polyélectronique comme l'hélium. Pour ce système, nous avons choisi de nous référer aux nombreux résultats déjà existants comme test de validité de notre approche. Cependant, nous avons parallèlement mené une étude sur un sujet plus ouvert afin de voir dans quelle mesure un traitement CV2 pouvait fournir de nouveaux résultats.

Deuxième partie

Dynamique de l'hélium en
interaction avec des impulsions
laser brèves et intenses

Introduction

TRÈS tôt, l'étude de l'hélium s'est avérée fondamentale non seulement pour la Physique Atomique mais plus généralement parce qu'il s'agit du système à trois corps en interaction le plus simple. La difficulté d'un tel problème est nécessairement contournée par des approximations, définissant le domaine de validité de chacune des techniques d'approche. Il serait très long de présenter exhaustivement les théories et expériences concernant l'hélium, nous nous contenterons donc de quelques exemples. Dès le milieu des années 80, de nombreux formalismes ont été mis en place pour décrire l'ionisation multiphotonique par impulsions laser IR lorsque le champ devient très bref. Dans ce cas, les corrélations électroniques sont traitées à divers niveaux d'approximation. Ainsi, des méthodes non perturbatives dépendantes du temps ont vu le jour, par exemple K.C. Kulander [148] adapte une théorie Hartree-Fock dépendante du temps traitant l'évolution temporelle des orbitales électroniques en utilisant le champ moyen créé par la densité électronique. La fonction d'onde électronique dépendante du temps est dans ce cas représentée par un simple déterminant de Slater (« Restricted time-dependent Hartree-Fock method »). Diverses améliorations ont été proposées, en particulier en affinant les termes de répulsion électrostatique entre les électrons par M.S. Pindzola *et al.* [149] ou par une approche Hartree-Fock dépendante du temps non restrictive, c'est-à-dire où les orbitales électroniques prennent mieux en compte les effets d'écran [150]. Parmi les expériences qui ont singulièrement permis de comprendre la dynamique de double ionisation induites par des impulsions laser IR, nous pouvons citer celle de B. Walker *et al.* [151]. L'amélioration conséquente de la résolution (par rapport à [152]) met clairement en évidence deux mécanismes d'ionisation double par BSI⁸ (cf. §1.3.2) : l'un qualifié de « séquentiel » et l'autre de « non-séquentiel » via l'apparition d'un décrochage dans le taux de production d'ions He^{2+} . Ils arrivent à

⁸Rappel : Barrier suppression ionization

la conclusion que ce processus non-séquentiel est la conséquence d'une recollision électronique, que l'on peut interpréter dans le cadre du modèle en trois étapes [57] (cf. §1.2.2).

A présent, l'utilisation de rayonnements XUV modifie complètement les processus d'ionisation. Dans ce domaine, la dynamique est dominée par des transitions n'impliquant que peu de photons et nous limiterons notre étude à deux cas particuliers du système {hélium+champ laser} en interaction : la double photoionisation (DPI mais parfois appelée photo-double-ionisation) à un et deux photons (en abrégé $\text{DPI}\omega$ et $\text{DPI}2\omega$). Les deux électrons éjectés dans le double continuum se partagent alors l'excès d'énergie apporté par le ou les photons du laser. La connaissance de leurs distributions en angle, en énergie ou des sections efficaces totales va nous renseigner sur les mécanismes de DPI ainsi que sur le rôle des corrélations électroniques. Concernant cet aspect, il est à noter que dès les années 60, une intense activité théorique s'est développée autour de la description de la structure atomique de l'hélium, en particulier par la mise au point de fonctions d'onde très précises pour l'état fondamental [153, 154, 155, 156, 157, 158]. Une bonne modélisation de cet état, surtout dans la manière dont les corrélations sont prises en compte, est déterminante pour la précision des calculs ultérieurs [159, 160, 161]. Dans ces articles, F.W. Byron et C.J. Joachain ont développé la fonction d'onde de l'état initial en ondes partielles et calculé la section efficace de DPI qui s'avère en bon accord avec les résultats expérimentaux de T.A. Carlson [162]. Mais, à la limite asymptotique des énergies de photon élevées, ils estimèrent l'incertitude de leurs résultats à 25%. En 1970, R.L. Brown [163] améliore sensiblement la description de l'état fondamental à l'aide des fonctions d'onde de Hylleraas [164]. Il confirme ainsi les résultats de Byron et Joachain pour des énergies de photon comprises entre 100 et 300 eV. De plus, ses résultats s'accordent bien avec un développement de Born, considéré comme « asymptotiquement » exact. Bien que les conclusions soient les mêmes, à savoir l'emploi indispensable d'un état fondamental très précis concernant les corrélations, ces auteurs les négligent dans la description du double continuum. Ce dernier est donc simplement représenté par un produit symétrisé de fonctions Coulombiennes non corrélées, chaque électron subissant un champ créé par une charge $Z = 2$. Ils s'accordent pour dire que les effets d'écran ainsi que l'interaction électronique mutuelle sont négligeables sur le calcul de la section efficace totale. Dès que l'intérêt s'est porté sur la dynamique électronique (conjointement aux progrès expérimentaux de détection), beaucoup d'informations ont pu être apportées sur les corrélations par les distributions en angle et en énergie des électrons éjectés (également nommées sections efficaces différentielles). Théoriquement, ces sections nous sont données par

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega_k \partial \Omega_{k'} \partial \varepsilon_k \partial \varepsilon_{k'}} \propto |T_{fi}|^2 \delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i - n\omega) \quad n = (1, 2) \quad (3.46)$$

Du fait de la conservation de l'énergie, cette distribution est cinq fois dérivée. D'un point de vue pratique, les angles polaires sont très souvent fixés et la mesure des vecteurs d'onde \vec{k} et \vec{k}' se fait dans un plan (géométrie coplanaire) ce qui réduit à une section efficace en angle triplement dérivée (SETD). Dès lors, les théories décrivant cette SETD diffèrent dans la manière de prendre en compte les corrélations dans l'état final et peuvent se classer en trois catégories [165]. Une première classe de théories analytiques approchées tend à décrire le mouvement corrélé des trois particules dans l'espace. Nous pouvons citer d'une part une méthode fondée sur des charges nucléaires variables en fonction de l'orientation et la norme des vecteurs d'onde de chacun des électrons dans le continuum de l'atome [166, 167] et dénommée 2SC (« Two Screened Coulomb wavefunctions »). D'autre part, une description purement Coulombienne des corrélations électroniques [168, 169, 170, 171] dénommée 3C (« Three Coulomb wavefunctions ») issue des travaux de M. Brauner, J.S. Briggs et H. Klar [172] et S. Jetzke et F.H.M. Faisal [173]. Bien qu'efficaces dans les cas particuliers de l'équipartition de l'énergie électronique, elles sont mises à mal pour une répartition inégale [174]. Enfin, nous pouvons citer un système de corrélations modélisées par une fonction gaussienne ajustable [175]. Actuellement, la DPI ω est bien comprise dans le cadre d'une méthode CCC adaptée [176, 177, 76, 77] qui constitue un exemple de la seconde classe des approches, de type complètement numériques. Dans ce contexte également, nous pouvons évoquer une méthode fondée sur les B-splines transposée à l'étude de l'hélium [178, 179]. La dernière classe d'approches regroupe celles fondées sur la théorie de Wannier [180] adaptée à l'étude près du seuil de double ionisation [181, 182, 183, 184, 185], où il est attendu que les électrons émergent de manière prédominante dans des directions opposées. De nombreux travaux sont aujourd'hui engagés dans ce sens [186, 187, 188].

Expérimentalement, nous pouvons nous rapprocher des résultats de O. Schwarzkopf *et al.* [189] utilisant un rayonnement synchrotron suffisamment énergétique pour ioniser doublement avec un photon et regarder l'émission angulaire des électrons. L'intérêt est ciblé sur la répartition de l'excès d'énergie entre chacun des électrons, en particulier les cas à l'équipartition [190]. Ces résultats peuvent être complétés par une étude de l'éjection des électrons près du seuil d'ionisation [191]. Les figures d'éjection ainsi produites présentent des profils en lobe très particuliers dont nous détaillerons la structure à l'équipartition à partir de considérations sur la symétrie des fonctions d'onde. Puis, l'utilisation de la nouvelle technique de détection des ions de recul (« Cold-Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy » ou COLTRIMS

[10]) a permis des mesures bien plus précises et dans un plus grand nombre de configurations angulaires et énergétiques. De nouveaux profils angulaires ont alors pu être observées [192, 193]. Enfin, l'utilisation de photons de très haute énergie met à jour différents mécanismes sous-jacents à la $DPI\omega$ [194, 195], et sur lesquels nous reviendrons également. Ces quelques références ont pour but de souligner l'abondance de résultats sur la $DPI\omega$ et le bon accord expérience théorie.

En revanche, pour le cas à deux photons, quand $\omega > 2 \text{ u.a.}$ l'analyse est rendue plus compliquée par la compétition entre deux processus : l'absorption « directe » ou « séquentielle ». La $DPI2\omega$ demeure encore un sujet largement ouvert car les résultats théoriques divergent. L'essentiel des travaux disponibles se focalisent sur le calcul des sections efficaces par diverses méthodes [178, 196, 197, 198, 199, 200, 201, 202, 179] ou sont extraites des résultats expérimentaux [6, 3]. Aucune distribution angulaire expérimentale n'est actuellement disponible, nous ne disposons à ce propos que quelques résultats théoriques [199, 201, 202]. L'enjeu est de taille et le but de cette partie est de savoir dans quelle mesure un développement Coulomb-Volkov pourrait se situer dans ce nouveau champ d'étude. Ainsi, à partir de l'expression de l'amplitude de transition de base établie au chapitre 2, nous nous proposons au chapitre 4 d'en déduire la densité de probabilité et de l'exploiter sur trois aspects : la distribution en angle, en énergie et la section efficace totale. En outre, nous allons mener de front les cas à un et deux photons afin de mettre en évidence les améliorations successives que nous envisageons sur chacune des situations. Il faut cependant signaler d'emblée les limitations intrinsèques auxquelles nous nous attendons. La première est l'absence de corrélations électroniques dans l'état final. Cette limitation est pourtant à la base de la question suivante : quelle peut être l'influence des corrélations sur la dynamique ? Mais également, quels sont les types de corrélations qui jouent un rôle ? Bien que nous présumons l'importance de ce point, nous nous efforcerons de répondre à cette question au chapitre 5 en mettant en place successivement des systèmes corrélés inspirés des méthodes 2SC et 3C. La seconde question que nous nous sommes posés est l'importance de l'état fondamental dans une telle dynamique. Le niveau d'approximation que nous faisons dans notre modèle de base est-il suffisant pour représenter correctement la dynamique d'interaction, en particulier quand l'intensité devient importante ? C'est la trame du chapitre 6 dans lequel nous avons raffiné la description de l'état fondamental par la prise en compte d'un plus grand nombre d'orbitales atomiques afin de mieux décrire et d'évaluer plus en détail la contribution des corrélations. Enfin, la troisième question concerne le traitement des états intermédiaires. En effet, nous avons démontré que ces états n'interviennent pas dans CV2, cependant nous pouvons évaluer leur

influence par comparaison avec un développement Born au deuxième ordre. Dans ce cadre, l'inclusion explicite de l'un de ces états à la dynamique de $\text{DPI}2\omega$, $He^+(1s, \vec{k})$, est étudiée au chapitre 7.

Ce travail que nous avons mené sur l'hélium en interaction avec une impulsion laser s'articule donc en quatre temps autour de chacune des questions précitées. Il faut cependant garder à l'esprit qu'une description très détaillée serait aussi très coûteuse en temps de calcul. Les choix qui ont été faits par la suite, surtout à propos des fonctions d'onde, se situent dans un objectif de rapport description réaliste sur temps de calcul court. Ceci afin de toujours conserver la rapidité de nos calculs, spécificité d'une approche CV2.

Chapitre 4

La double photoionisation de l'hélium à un et deux photons

4.1 Introduction

CE chapitre a pour but de placer le cadre de notre étude : nous détaillerons les différents mécanismes qui constituent la DPI de l'hélium à un et deux photons, afin de pouvoir les identifier plus facilement dans le traitement CV2 qui suit. Nous allons donc développer une approche de base et regarder à partir des résultats le degré d'approximation que ce traitement peut nous fournir. Il s'agit de se donner un premier point de repère sur lequel nous nous appuierons pour ensuite améliorer la description. Commençons tout d'abord par regarder en détail quels sont les mécanismes qui constituent la DPI.

4.2 Les mécanismes de la DPI

La DPI d'un atome d'hélium par absorption d'un ou deux photons d'une même impulsion laser est représentée par les réactions suivantes

$$\begin{aligned} He + \omega &\rightarrow He^{2+} + e_{\vec{k}}^- + e_{\vec{k}'}^- \\ He + 2\omega &\rightarrow He^{2+} + e_{\vec{k}}^- + e_{\vec{k}'}^- \end{aligned} \quad (4.1)$$

Nous n'étudierons pas de cas où ces deux processus peuvent intervenir simultanément car les énergies des photons du laser en jeu dans chaque cas sont très différentes et nous choisirons des énergies s'affranchissant de toute ambiguïté concernant ces mécanismes. Nous remarquons immédiatement que la répulsion électrostatique joue un rôle fondamental tant dans la structure atomique que lorsque les deux électrons sont éjectés dans le continuum.

4.2.1 La double photoionisation à un photon : $\text{DPI}\omega$

Il s'agit de l'interaction de He avec un photon du champ laser. Ce dernier apporte suffisamment d'énergie pour franchir le potentiel de double ionisation de l'hélium (cf. FIG. 4.1).

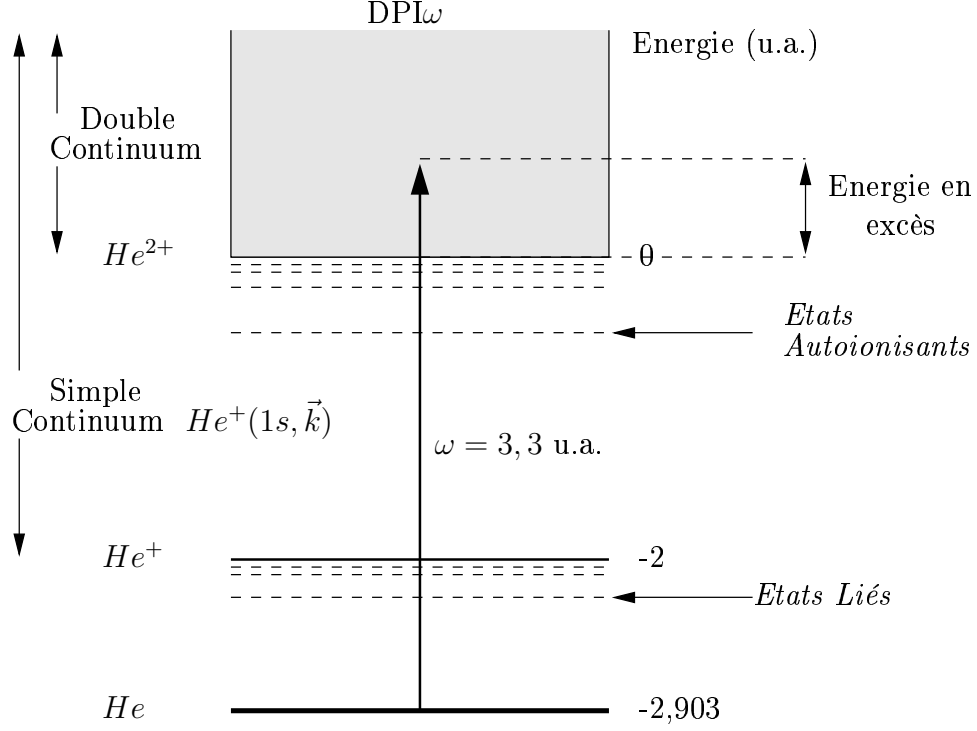


FIG. 4.1 – Représentation schématique de la $\text{DPI}\omega$.

Dans le cadre d'un modèle à électrons indépendants, la $\text{DPI}\omega$ ne peut pas se produire. En effet, d'un point de vue formel, des recouvrements entre états liés et du continuum de He présentant des charges nucléaires identiques apparaissent. Ces recouvrements sont nuls du fait de l'orthonormalisation des fonctions d'onde. Par ailleurs, l'étude de la section efficace généralisée ne peut pas rendre compte de chacun des mécanismes individuels sous-jacents à la DPI . Ainsi, le recours à des sections efficaces différentielles permet de mettre en lumière des processus plus subtils. La distinction se fait sur deux critères essentiels : l'énergie des photons mis en jeu et les profils de distribution en énergie et en angle. Ces derniers, vont être étudiés à l'aide de la densité de probabilité en énergie et en angle dont nous avons parlé en introduction. L'objectif est de distinguer l'orientation préférentielle d'éjection des électrons lors de l'ionisation car elle est la conséquence directe d'effets pure-

ments classiques comme les corrélations électroniques ou quantiques comme la relaxation sur les nouveaux états propres de l'atome. Comme nous l'avons souligné, elle dépend de six paramètres qui sont les coordonnées des vecteurs d'onde de chacun des électrons dans le double continuum de l'atome (cf. FIG. 2.1 §2.5.1) et est directement reliée à l'amplitude de transition et à la probabilité totale par les relations suivantes

$$\left\{ \begin{array}{ll} \mathcal{D}(k, k', \theta_k, \theta_{k'}, \phi_k, \phi_{k'}) = |T|^2 & \Omega = (\phi, \theta) \\ \mathcal{D}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \Omega_k, \Omega_{k'}) = k k' \times |T|^2 & \varepsilon_k = \frac{k^2}{2} \\ \mathcal{P} = \int d\vec{k} \int d\vec{k}' \mathcal{D}(k, k', \Omega_k, \Omega_{k'}) \end{array} \right. \quad (4.2)$$

La conservation de l'énergie ainsi que la géométrie coplanaire de l'étude réduisent cette densité à la SETD⁹. Elle représente donc un outil essentiel dans la compréhension de la dynamique. Si nous voulons appréhender quels sont les phénomènes inclus dans une description Coulomb-Volkov, il est nécessaire de les distinguer préalablement. Nous trouvons dans la littérature une nomenclature définissant chacun des mécanismes de la DPI d'un point de vue phénoménologique. Plusieurs représentations sont utilisées, et nous avons choisi d'en donner une version qui nous semble la plus pédagogique [203]. Cependant, comme les corrélations sont un élément fondamental de la dynamique, il apparaît nécessaire de regarder avant tout ce point en détail.

Les corrélations {électron-électron}

Le terme d'interaction {électron-électron} intervient directement dans le Hamiltonien sous la forme d'un opérateur \mathcal{I}_{12} (cf. §1.4.1) dépendant des vecteurs positions \vec{r}_1 et \vec{r}_2 de chaque électron mais également de l'angle Θ_{12} défini entre chacun de ces vecteurs (cf. FIG. 1.8 §1.4.1). Nous pouvons l'exprimer sous la forme d'un développement en polynômes de Legendre

$$\mathcal{I}_{1,2} = \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} = \sum_{\ell=0}^{\infty} \frac{(r_{<})^{\ell}}{(r_{>})^{\ell+1}} P_{\ell}(\cos \Theta_{12}) \quad (4.3)$$

où $r_{<}$ et $r_{>}$ sont respectivement la valeur minimale et maximale du couple (r_1, r_2) . Rappelons que si l'on néglige totalement cette interaction dans l'état initial et l'état final de l'atome, la DPI ω est nulle. Le développement à l'ordre 0 sur ℓ va nous donner un terme purement « radial » puisque l'on a $P_{\ell=0}(\cos \Theta_{12}) = 1$, qui est assimilé à des effets d'écran. Le développement

⁹Rappel : Section efficace triplement dérivée

aux ordres supérieurs, dépendant explicitement de Θ_{12} , inclut également des corrélations de type « angulaire » couplant des moments ℓ différents.

Le TS1 : Two-Step-One

Une vue simple du TS1 serait l'interaction de l'un des électrons avec le champ laser, puis son éjection de la structure atomique. Lors de ce « trajet » au sein de l'atome, l'éjection de l'autre électron se produit via l'interaction (ou collisions) {électron-électron}. Cette hypothèse est fortement accréditée par la proportionnalité entre la section efficace de double ionisation par impact d'électron de He^+ et le quotient de la section efficace de DPI sur la section efficace totale en fonction de l'excès d'énergie apportée par la collision. Cette proportionnalité est observée tant expérimentalement [204] que théoriquement [205]. Dans le cas du TS1, les corrélations se produiraient à des échelles de temps très courtes (subfemtoseconde) et confinées dans une petite région de l'espace proche du nuage électronique. Cet effet peut être interprété classiquement par la répulsion électrostatique agissant entre chaque électron, et est représenté par la FIG. 4.2.

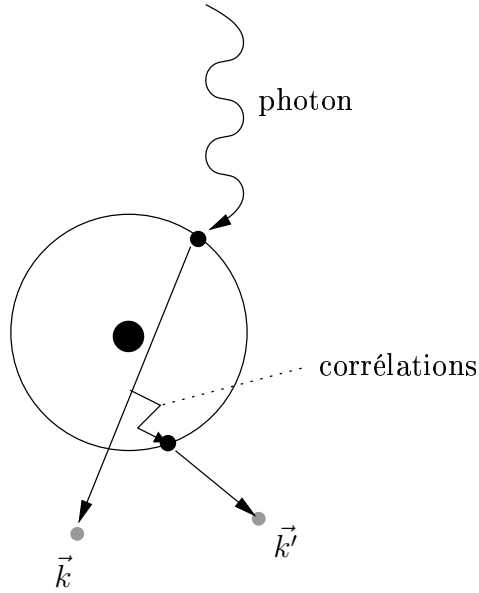


FIG. 4.2 – Représentation schématique du TS1.

Il est évident que sur cette figure, la représentation est arbitraire et qu'en particulier, les électrons sont soumis à l'interaction avec le noyau non représentée. Notons qu'une description qui ne prendrait pas en compte les corrélations

tions angulaires, se priverait de facto de ce mécanisme dominant jusqu'à un excès d'énergie de 450 eV [206].

Le Shake-off

Si l'un des électrons est extrait brutalement par un photon d'énergie élevée (considéré dans l'approximation soudaine) la fonction d'onde de l'électron restant doit être projetée sur les nouveaux états propres de l'atome. Du fait qu'une part de ces états se situent dans le continuum, l'électron restant possède alors une probabilité de se retrouver éjecté à son tour (« Shake off »), lors de ce processus de relaxation. La FIG. 4.3 schématise ce processus, l'état propre de l'atome étant représenté par la partie grisée.

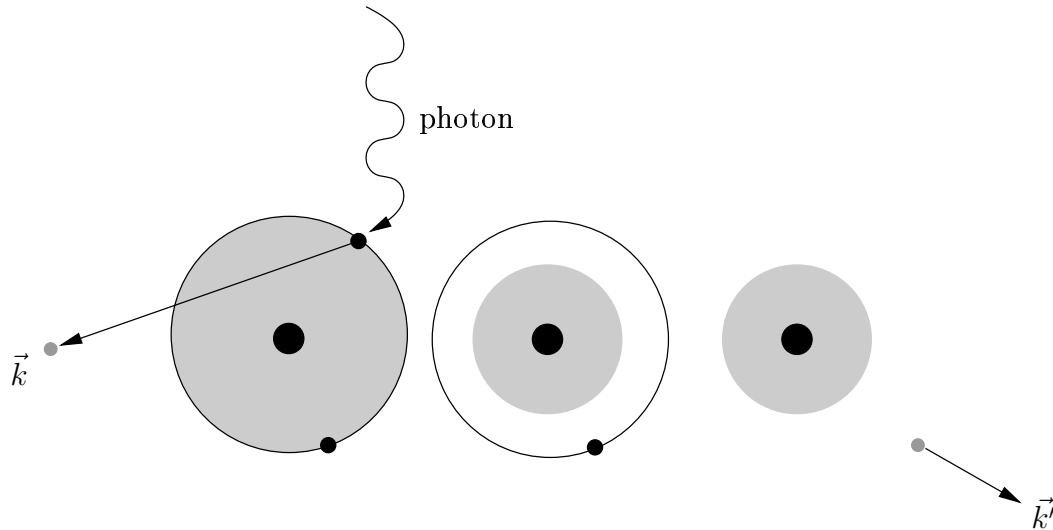


FIG. 4.3 – Représentation schématique du Shake-off.

Il s'agit d'un effet purement quantique dominant au-delà de 450 eV d'excès d'énergie [206].

4.2.2 La double photoionisation à deux photons : DPI 2ω

La DPI 2ω se compose de plusieurs processus semblables à ceux de la DPI ω . Cependant, il faut noter une différence fondamentale car nous avons parlé de deux processus à priori possibles, « direct » et « séquentiel ». Bien que tous deux interfèrent pour $\omega > 2 u.a.$, on peut privilégier l'action de l'un d'eux par un choix judicieux de l'énergie des photons incidents. Comme nous le verrons par la suite, le calcul de base de la DPI 2ω fait apparaître

le produit de deux amplitudes représentant le couplage dipolaire entre les orbitales de type $1s$ et un continuum de type kp . Ce produit est non nul dans un modèle à électrons indépendants contrairement à la $\text{DPI}\omega$. Cependant, dans le cas $\omega < 2 \text{ u.a.}$, la corrélation dans l'état initial $\text{He}(1s)^2$ joue un rôle important car elle permet énergétiquement la $\text{DPI}2\omega$. On s'attend donc à une contribution différente des corrélations dans la $\text{DPI}\omega$ et $\text{DPI}2\omega$.

$\text{DPI}2\omega$ directe et séquentielle

La FIG. 4.4 suivante représente le cas où ces deux processus coexistent c'est-à-dire pour $\omega > 2 \text{ u.a.}$.

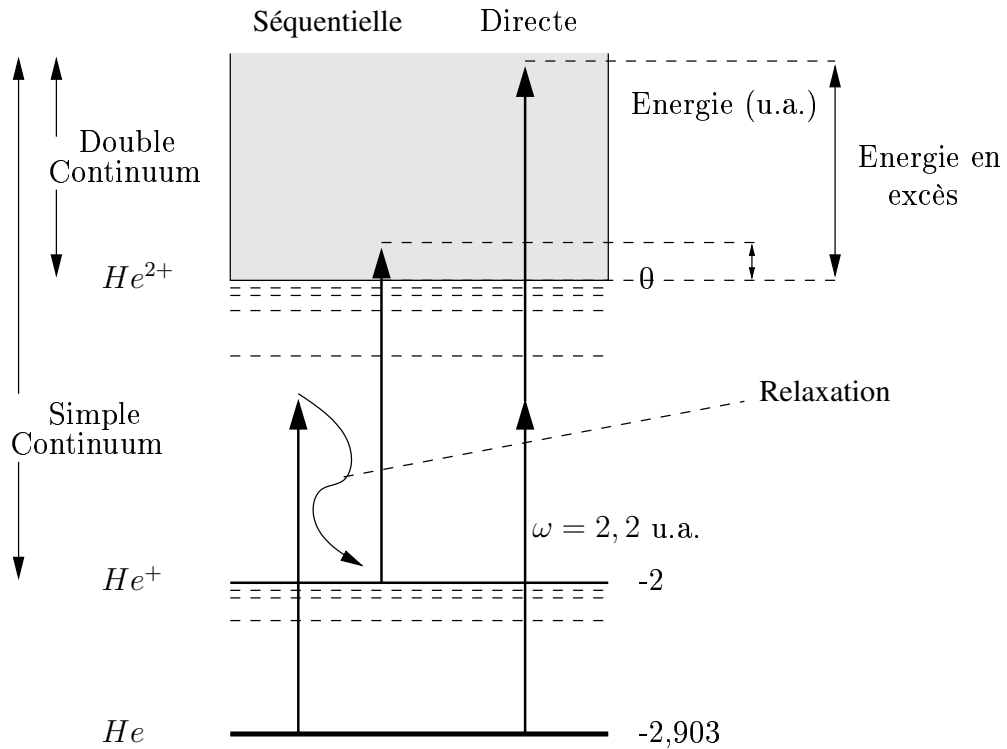


FIG. 4.4 – Représentation schématique de la $\text{DPI}2\omega$ directe et séquentielle.

Dans le cas direct, l'absorption simultanée de deux photons amène suffisamment d'énergie pour ioniser doublement l'atome. Dans l'autre cas, l'absorption du premier photon mène à l'ionisation simple. Puis, un processus de relaxation permet à l'ion résiduel de se retrouver dans un état fondamental de He^+ et enfin l'absorption du second photon mène à la double ionisation. Dans sa formulation de base, la théorie Coulomb-Volkov n'est efficace que

pour décrire des transitions ne mettant pas en jeu le passage par des états intermédiaires. S'ils contribuent effectivement, de tels passages doivent être introduits explicitement dans le calcul. Nous allons alors nous fixer pour objectif l'étude de la DPI 2ω de l'hélium quand seul le processus direct contribue, et nous nous placerons préalablement dans des cas éloignés de toutes résonances par états intermédiaires liés. Ainsi, il sera possible d'apprécier le rôle des corrélations dans l'état final par la mise en place d'une modélisation adaptée. De plus, un seul chemin quantique intervient, ce qui facilite grandement l'exploitation des résultats en éliminant les possibilités d'interférences par le processus séquentiel ou les états de la structure atomique. Nous devons donc imposer des contraintes sur l'énergie des photons qui permettent à ce seul processus direct de dominer. En effet, l'énergie apportée par l'ensemble des deux photons doit être au minimum suffisante pour atteindre le seuil de double-ionisation, soit $\omega = \frac{\Delta\varepsilon_{He^{2+}}}{2} \approx 1,4515 \text{ u.a.}$ avec $\Delta\varepsilon_{He^{2+}} = 2,9037244 \text{ u.a.}$ d'après les calculs de Pekeris [156]. L'absorption d'un seul photon de ce type mène au simple continuum avec un ion résiduel $He^+(1s)$. En effet, atteindre le premier état excité $n = 2$ de He^+ requiert $\omega \geq 2,4037244 \text{ u.a.}$ Par ailleurs, l'ionisation subséquente de $He^+(1s)$ ne peut se faire que si $\omega \geq 2 \text{ u.a.}$ La double photoionisation directe ne se produira donc *seule* que si l'énergie des photons interdit l'ionisation de He^+ après relaxation. Ce qui impose $\omega < 2 \text{ u.a.}$ En définitive, le processus direct est garanti si

$$1,4515 < \omega < 2 \quad [u.a.] \quad (4.4)$$

Il est à noter que ce raisonnement ne tient pas compte de la largeur spectrale du laser susceptible de rendre floues les limites de cet intervalle. Si cette largeur est assez grande, elle peut faire réapparaître l'influence de processus séquentiels mettant en jeu des états intermédiaires tels que $He^+(n\ell)$ avec $n \geq 2$. Nous allons choisir dans la plupart des calculs faits les cas-type $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$ pour la DPI ω et $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ pour la DPI 2ω . Ceci nous permet, comme représenté par les figures précédentes, de considérer des transitions suffisamment éloignées des états de Rydberg de He mais aussi des premiers états excités de He^+ . Détaillons rapidement les processus impliqués dans la DPI 2ω . Nous omettrons maintenant de préciser le caractère direct des transitions car nous nous plaçons de facto dans ce contexte.

Le TS1 à deux photons

Il s'agit exactement du même processus qu'à un photon décrit plus haut excepté que l'éjection de l'un des deux électrons se fait par absorption de deux

photons du champ. Comme précédemment, l'autre éjection est la conséquence des corrélations électroniques.

Le TS2 : Two-Step-Two

Il s'agit de l'interaction simultanée de chaque électron avec un photon. Il faut noter que ce processus met en jeu l'interaction entre les électrons car il est énergétiquement interdit dans un modèle à électrons indépendants pour $\omega < 2 \text{ u.a.}$ La question de la compétition entre le TS1 à deux photons et le TS2 est donc ouverte.

Le Shake-off

De la même manière qu'à un photon, il s'agit de l'absorption de deux photons très énergétiques par le même électron puis de l'éjection du second par relaxation sur les états du continuum de He^+ . En pratique, ce cas ne devrait pas intervenir pour la DPI2 ω directe puisque nous limitons l'énergie des photons à 2 u.a.

4.3 Le développement de base de la DPI : la densité de probabilité $\mathcal{D}_{(1s)^2}$

Ce paragraphe est consacré au développement analytique puis à l'exploitation des distributions angulaires, énergétiques et les sections efficaces issues de la densité de probabilité de DPI sous sa forme la plus simple. Rappelons que nous avons représenté pour ce cas, l'état fondamental par un produit d'orbitales hydrogénoïdes $1s$ avec une charge écrantée $Z_i = 1,6875$, et l'état final par un produit antisymétrisé d'une phase de Volkov et de fonctions d'onde Coulombiennes. Pour ces dernières, nous supposons que les électrons évoluent de manière indépendante dans le double continuum. Ainsi, chacun d'entre eux subit un champ créé par une charge nucléaire asymptotique et fixée à $Z_k = Z_{k'} = 2$. L'objectif étant de faciliter l'étude des améliorations qui suivent à l'aide d'une expression initialement plus simple à manipuler. Cette approche sera ensuite discutée sur la base de comparaisons avec d'autres résultats. Regardons tout d'abord l'expression de la densité de probabilité que l'on relie à l'amplitude de transition via la formule

$$\mathcal{D}_{(1s)^2}(k, k', \Omega_k, \Omega_{k'}) = \left| T_{(1s)^2}^- \right|^2 \quad (4.5)$$

Chaque électron se trouve finalement dans un état du continuum dont l'énergie cinétique respective est $\varepsilon_{\vec{k}} = \frac{k^2}{2}$ et $\varepsilon_{\vec{k}'} = \frac{k'^2}{2}$. Si nous souhaitons une expression de la densité de probabilité en fonction de ces énergies, nous devons alors utiliser

$$\mathcal{D}_{(1s)^2}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \Omega_k, \Omega_{k'}) = kk' \times \left| T_{(1s)^2}^- \right|^2 \quad (4.6)$$

En se souvenant du résultat

$$|\Gamma(1 - i\nu)|^2 = \frac{2\pi\nu}{\exp(\pi\nu) - \exp(-\pi\nu)} \quad (4.7)$$

Nous obtenons donc à partir de (2.66) l'expression finale de $\mathcal{D}_{(1s)^2}$

$$\begin{aligned} \mathcal{D}_{(1s)^2}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \Omega_k, \Omega_{k'}) &= \frac{2^{11}}{\pi^2} \frac{Z_i^6 Z_k Z_{k'}}{(1 - \exp(-2\pi\nu))(1 - \exp(-2\pi\nu'))} \\ &\times \left| \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \right. \\ &\times \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{B}'^{i\nu'-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \mathcal{H}'^{-i\nu'-1} \left\{ \left[-iZ_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} \right. \right. \\ &+ \nu A_z^-(1 + i\nu)(Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} + \nu(1 - i\nu) [\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^-] \left. \right] \\ &\times \left[Z_i(1 - i\nu') \mathcal{H}' + i\nu'(Z_i - ik') \mathcal{B}' \right] + \left[k \longleftrightarrow k' \right] \left[k \longleftrightarrow k' \right] \left. \right\}^2 \end{aligned} \quad (4.8)$$

A ce stade du développement, deux remarques importantes sont à faire. A propos de la configuration spatiale et de la distribution en angle, on peut noter que \mathcal{D} ne comporte aucune dépendance en ϕ_k et $\phi_{k'}$. Ceci signifie qu'il existe une symétrie de révolution autour de l'axe (O_z). Naturellement, l'étude de la géométrie coplanaire s'impose, puisque toutes les informations que nous pourrions extraire de cette expression seront contenues dans cette configuration. Sa généralisation à l'espace se déduit par une simple rotation. Nous pouvons donc écrire $\mathcal{D}_{(1s)^2}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \Omega_k, \Omega_{k'}) \equiv \mathcal{D}_{(1s)^2}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \theta_k, \theta_{k'})$. Nous percevons d'emblée l'une des limitations de cette formulation puisque les figures d'éjections expérimentales et théoriques concernant la DPI ω sont en général fonction des angles polaires et azimutaux. Cette dépendance devra apparaître lors des diverses améliorations. Par ailleurs, rappelons que les électrons

se partagent l'énergie apportée par un ou deux photons du champ en excès au-dessus du seuil de double ionisation que l'on peut résumer par

$$\begin{aligned} DPI\omega & \quad \varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} = \varepsilon_{He} + \omega \\ DPI2\omega & \quad \varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} = \varepsilon_{He} + 2\omega \end{aligned} \quad (4.9)$$

Il faut toutefois remarquer que nous nous plaçons dans le cas où ω est la fréquence centrale de la distribution spectrale de l'impulsion laser. Nous supposons donc que satisfaire (4.9) est la situation physique de répartition de l'énergie entre les électrons la plus probable. Ce cas constituera donc l'un des exemples récurrents d'étude dans la suite du manuscrit. Pour ce qui est de la section efficace et d'après l'expression de l'annexe F, la donnée importante est la probabilité totale. Celle-ci nous est fournie en intégrant la densité de probabilité sur chacun des vecteurs \vec{k} et \vec{k}' .

$$\mathcal{P}_{(1s)^2} = \int d\vec{k} \int d\vec{k}' \mathcal{D}_{(1s)^2}(k, k', \theta_k, \theta_{k'}) \quad (4.10)$$

D'où nous tirons une expression de la probabilité en fonction de $\mathcal{D}_{(1s)^2}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \theta_k, \theta_{k'})$ après intégration sur ϕ_k et $\phi_{k'}$

$$\mathcal{P}_{(1s)^2} = 4\pi^2 \int_0^{+\infty} k dk \int_0^{+\infty} k' dk' \int_0^\pi \sin \theta_k d\theta_k \int_0^\pi \sin \theta_{k'} d\theta_{k'} \mathcal{D}_{(1s)^2}(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'}, \theta_k, \theta_{k'}) \quad (4.11)$$

Ce qui nous donne en utilisant (4.8)

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{(1s)^2} &= 2Z_k Z_{k'} (64Z_i^3)^2 \int_0^{+\infty} dk \int_0^{+\infty} dk' \int_0^\pi d\theta_k \int_0^\pi d\theta_{k'} \\ & \quad \frac{k \sin \theta_k k' \sin \theta_{k'}}{(1 - \exp(-2\pi\nu))(1 - \exp(-2\pi\nu'))} \\ & \quad \times \left| \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_\tau^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \right. \\ & \quad \times \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{B}'^{i\nu'-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \mathcal{H}'^{-i\nu'-1} \left\{ \left[-iZ_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} \right. \right. \\ & \quad \left. \left. + \nu A_z^-(1 + i\nu)(Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} + \nu(1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^- \right] \right] \right. \\ & \quad \left. \times \left[Z_i(1 - i\nu') \mathcal{H}' + i\nu'(Z_i - ik') \mathcal{B}' \right] + \left[k \longleftrightarrow k' \right] \left[k \longleftrightarrow k' \right] \right\} \left. \right|^2 \end{aligned} \quad (4.12)$$

Dans l'expression précédente, le dernier terme du facteur entre accolades fait référence à celui qui le précède dans lequel k est remplacé par k' .

4.3.1 Double ionisation à un photon

Dans ce paragraphe, nous présentons les résultats que nous avons obtenus avec des codes calculant la densité de probabilité (4.8) et la probabilité (4.12). Dans l'absolu, ils sont capables de calculer tous les ordres directs de transition multiphotoniques. Mais nous les avons limités aux calculs à un photon, afin de pouvoir comparer aux nombreux résultats déjà publiés sur la DPI ω . Ainsi, nous avons fait le choix des paramètres laser suivants : $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ ce qui correspond à une intensité de $I_0 \simeq 3,51.10^{10} \text{ W.cm}^{-2}$ et nous assure de travailler dans le régime perturbatif. L'impulsion laser présente une énergie de photon de $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$ et 30 cycles optiques, ce qui correspond à une durée d'impulsion d'environ $1,4 \text{ fs}$. Pour comprendre quels sont les mécanismes décrits par cette densité, revenons en détail sur l'équation (2.57) qui a l'avantage d'être claire. Nous allons raisonner uniquement sur le premier terme entre crochets, car le même genre d'analyse est applicable au second terme. La transition à un photon implique un développement à l'ordre 0 des deux exponentielles issues de la phase de Volkov

$$\begin{aligned}
 & \int d\vec{r}_1 \psi_k^{-*}(\vec{r}_1) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1\right) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\
 & \xrightarrow{\text{ordre 0}} \int d\vec{r}_1 \psi_k^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\
 & \int d\vec{r}_2 \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2\right) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
 & \xrightarrow{\text{ordre 0}} \int d\vec{r}_2 \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}(\vec{r}_2)
 \end{aligned} \tag{4.13}$$

Dès lors, la première intégrale représente bien l'absorption d'un photon et l'ionisation de l'atome, la seconde est simplement le recouvrement de la fonction d'onde de l'électron restant avec celle du continuum. Un tel recouvrement se retrouve dans le Shake-off, mais ce processus produit un électron qui emporte la quasi-totalité de l'énergie en excès. Ce qui n'est, on le verra plus tard, pas le cas ici. On peut donc voir que la densité $\mathcal{D}_{(1s)^2}$ contient naturellement l'ionisation de l'hélium par un photon, et un processus de relaxation apparenté au Shake-off de l'autre électron menant ainsi à la double ionisation. Le TS1 n'est pas décrit puisque les corrélations angulaires sont ignorées. Ainsi, en termes de moment angulaire ℓ , si l'on regarde le couple (ℓ, ℓ') de ce système diélectronique, le seul canal ouvert par cette description lors de l'ionisation à

un photon est $(0, 0)$ dans la voie initiale vers $(0, 1)$ dans la voie finale. A partir de cette densité, nous nous sommes engagés sur une étude systématique des distributions en angle et en énergie pour chacun des cas à un et deux photons. Nous ne présenterons ici que quelques cas particuliers afin de ne pas alourdir inutilement le manuscrit, mais il est évident que de très nombreuses configurations peuvent être explorées. Tous les graphes sont regroupés en fin de paragraphe.

Distribution angulaire

Les résultats qui suivent ont été produits en étudiant un échantillon de 10 couples d'énergie $(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'})$ se répartissant l'excès d'énergie entre 0 et $0,45 \text{ u.a.}^{10}$. et satisfaisant la conservation de l'énergie (4.9). Puis, nous avons fixé la direction d'éjection du « premier » électron, symbolisée dans les figures par la flèche noire, par rapport à la direction de polarisation symbolisée par la flèche rouge et que nous avons fait varier l'angle d'éjection du « second » électron entre 0° et 360° . Nous parlerons abusivement de « premier » ou « second » électron bien qu'il n'existe pas de séquençement lors de la double ionisation et qu'il ne soit pas possible de les distinguer. Une correspondance énergie-couleurs des courbes que l'on retrouvera dans chacun des graphes a été établie, nous la présentons ici afin de ne pas surcharger la légende (en *u.a.*)

On observe que l'essentiel des figures est concentré dans une couronne restreinte, la dispersion est finalement assez faible. Mais également que l'éjection du second électron se fait préférentiellement dans la direction de polarisation de la lumière et donc essentiellement dans le demi-plan d'éjection du premier électron (cf. FIG. 4.6 a)). Le fait de changer la direction d'éjection du premier électron n'affecte qu'en magnitude le profil d'éjection du second (cf. FIG. 4.6 b)). Plus on se rapproche d'une éjection vers 90° plus l'éjection du second électron s'amenuise mais reste orientée suivant l'axe de polarisation (cf. FIG. 4.6 b)) et l'on peut remarquer les prémices d'un lobe à $\theta_{k'} = 180^\circ$. Le cas le plus intéressant est celui où le premier électron est éjecté à $\theta_k = 90^\circ$ (cf. FIG. 4.6 c)) où les lobes sont absolument symétriques, traduisant l'équiprobabilité de l'éjection de l'autre dans les deux directions de l'axe de polarisation. Cependant, pour le cas $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0,45 \text{ u.a.}$ (courbe rouge) est le seul qui échappe à cette hypothèse. Par ailleurs, nous avons vérifié qu'il existe une symétrie des profils d'éjection par rapport à l'axe perpendiculaire à la direction de polarisation pour tous les cas où $\theta_k > 90^\circ$. Cette première approche mène à des résultats prédisant une éjection préférentielle dans l'axe de

¹⁰Cette valeur est obtenue en tenant compte de l'énergie du photon fixée à $3,3 \text{ u.a.}$ et de l'énergie de l'état fondamental fixée pour le cas $H(1s)^2$ à $\varepsilon_{(1s)^2} = -2,8476562 \text{ u.a.}$

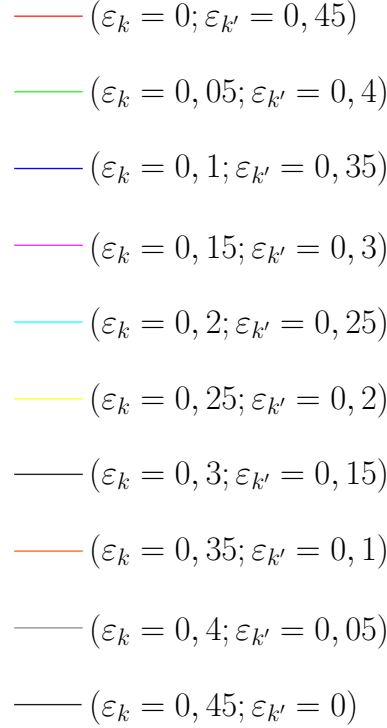


FIG. 4.5 – Correspondance couleur-énergie des couples $(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'})$ des courbes de densité pour $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$ et $\varepsilon_{(1s)^2} = -2,8476562 \text{ u.a.}$

polarisation et orientée dans le sens du premier électron (par exemple quand celui-ci est émis suivant $\theta_k = 0^\circ$). Ils sont en contradiction avec toutes les expériences [189, 191, 192, 195] qui montrent l'éjection du second électron dans le demi-plan opposé à celui contenant l'éjection du premier électron. La répulsion électrostatique devrait en effet interdire une telle configuration et l'absence de corrélations angulaires est directement à l'origine de ce résultat. Par ailleurs, nous vérifions qu'à l'équipartition avec première éjection à $\theta_k = 0^\circ$ (cf. FIG. 4.6 d)), il ne peut y avoir d'émission à $\theta_{k'} = 180^\circ$. Cette caractéristique s'explique par des considérations sur la parité des fonctions d'onde. L'indiscernabilité des électrons implique que les fonctions d'onde satisfont la condition $f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = f(\vec{k}_2, \vec{k}_1)$. De plus, l'inversion de symétrie donne $f(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = -(-1)^P f(-\vec{k}_1, -\vec{k}_2)$ où P est la parité de l'état initial. Supposons l'éjection d'un électron à $\theta_k = 0^\circ$ et l'autre à $\theta_{k'} = 180^\circ$ avec la même énergie, ce cas implique $\vec{k}_1 = -\vec{k}_2 = \vec{k}$ d'où $f(\vec{k}, -\vec{k}) = -(-1)^P f(\vec{k}, -\vec{k})$ et si P est pair, $f(\vec{k}, -\vec{k}) = 0$ [207]. Nous sommes exactement dans ce cas puisque

l'état initial se trouve être de symétrie $(1s)^2$.

Du fait de l'absence de corrélations dans l'état final, il n'y a aucune interdiction à ce que les électrons soient émis dans la même direction et avec la même énergie. Les calculs de base nous mènent donc à des situations non-physiques. La forme en lobe est due à la contribution des orbitales de symétrie p du continuum, imposées par les règles de sélection lors de l'absorption d'un photon. Celles-ci présentent une dépendance en $\cos\theta$ et par conséquent, la densité est explicitement fonction de $\cos^2\theta$; c'est ce facteur qui est à l'origine de ce profil.

Distribution en énergie

Les résultats sur la distribution en énergie (cf. FIG. 4.7) sont obtenus en fixant dans (4.8) l'angle d'éjection θ_k du premier électron à 0° (dans la direction de polarisation), son énergie (pour chacune des valeurs données dans la FIG. 4.5) et l'angle d'éjection du second électron. Cela signifie que l'on se déplace tout au long de la distribution en angle du premier graphe (cf. FIG. 4.6 a)) et que l'on calcule la distribution en énergie pour quelques valeurs de $\theta_{k'}$ choisies entre 0 et 180° . La distribution en énergie est évaluée en faisant varier $\varepsilon_{\vec{k}'}$ entre 0 u.a. et $0,45 + \Delta\varepsilon \text{ u.a.}$ Cette correction $\Delta\varepsilon$ correspond au surplus d'énergie qui peut être apporté par la largeur spectrale du laser. Elle est estimée à partir de la relation

$$\Delta\varepsilon = \frac{2\pi}{\tau/2} \quad (4.14)$$

où τ est la durée de l'impulsion. Nous pouvons vérifier que chaque distribution du second électron est bien centrée sur la conservation de l'énergie. La largeur constante de chacune d'elles est directement liée à la largeur spectrale du laser. De plus, on peut remarquer une relative uniformité dans les distributions en énergie, et ce jusqu'à $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 4.7 a), b), c)). Ceci confirme, surtout pour le premier graphe, la prédiction d'un cas non-physique où les deux électrons sont émis dans la même direction et avec la même énergie. Par ailleurs, nous pouvons constater que l'angle d'éjection influe fortement sur le calcul des distributions en énergie. Dès que l'on se rapproche d'une éjection à l'opposé du premier électron, les distributions s'atténuent rapidement et, les distributions extrêmes $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0 \text{ u.a.}$ (courbe noire) et $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0,45 \text{ u.a.}$ (courbe rouge), où le second électron emporte soit aucune partie soit la quasi-totalité de l'énergie en excès, deviennent prépondérantes (cf. FIG. 4.7 d)).

Section efficace

Les calculs que nous avons effectués sont comparés à ceux référencés dans l'article de M. Pont et R. Shakeshaft [208] (cf. FIG. 4.8). Bien que les résultats sur les distributions angulaires et énergétiques ne soient pas satisfaisants du fait de l'absence de corrélations, la section efficace présente quant à elle un bon accord. Les calculs coïncident près du seuil de double ionisation, puis les résultats CV2 ont tendance à s'écarter et à légèrement sous-estimer ces calculs de référence au-delà de $\omega = 3,5 \text{ u.a.}$ Il est assez surprenant de constater qu'une description non-physique à l'échelle des distributions en angle et en énergie donne des résultats tout à fait intéressants à l'échelle de la section efficace. Cette conclusion est déjà suggérée dans [160] où les auteurs estiment que les corrélations dans l'état final jouent un rôle négligeable. Cette étude nous apporte toutefois une certitude : il existe deux niveaux distincts d'appréciation de la $\text{DPI}\omega$, celui des distributions où le rôle des corrélations est absolument essentiel et celui de la section efficace où il ne l'est pas. Si on écarte un accord fortuit, on peut avancer l'hypothèse que notre modèle représente bien le mécanisme « primaire » de double éjection mais pas la redistribution de ce flux via l'interaction de configuration (notamment angulaire) puisque cette voie est absente. Ainsi, on aurait une section efficace totale correcte alors que les distributions en angle et en énergie ne le sont pas.

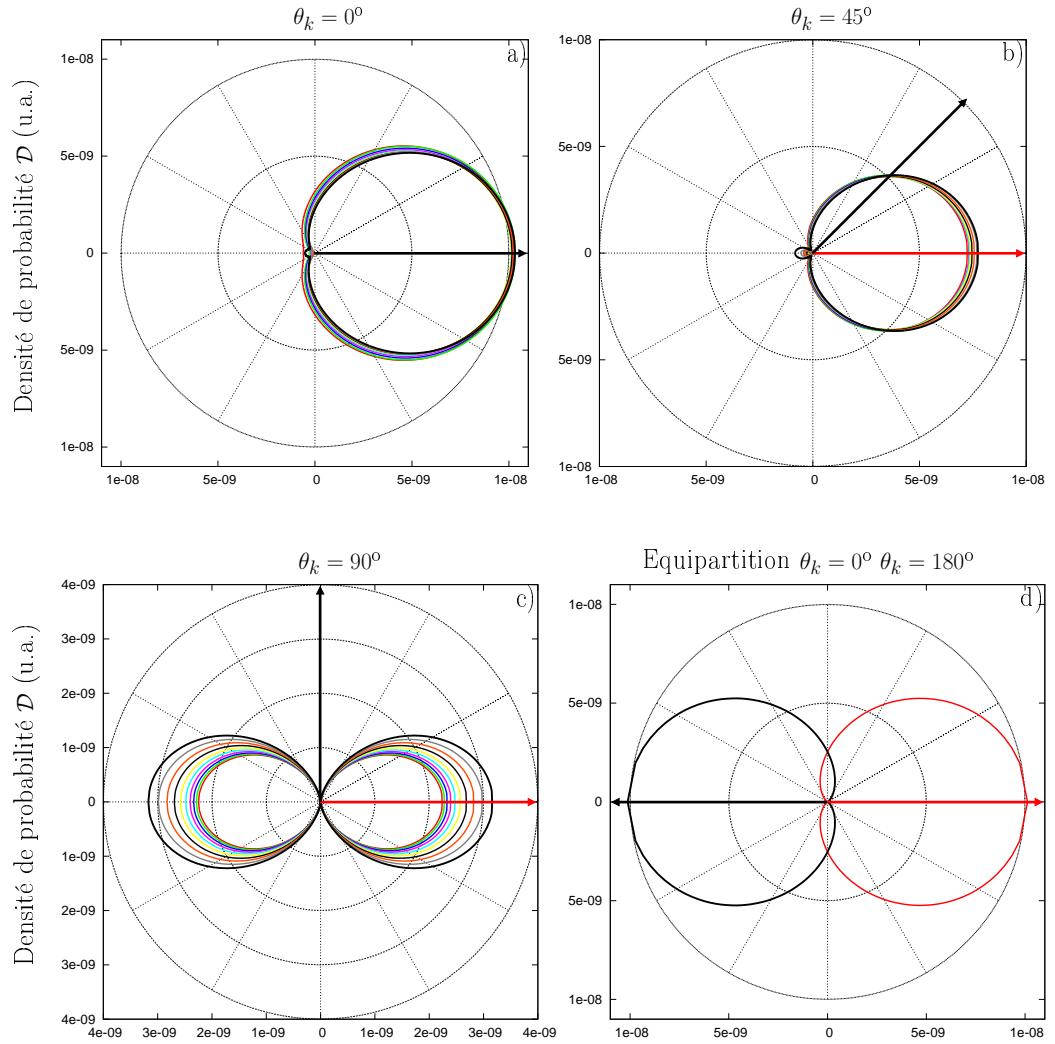


FIG. 4.6 – Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

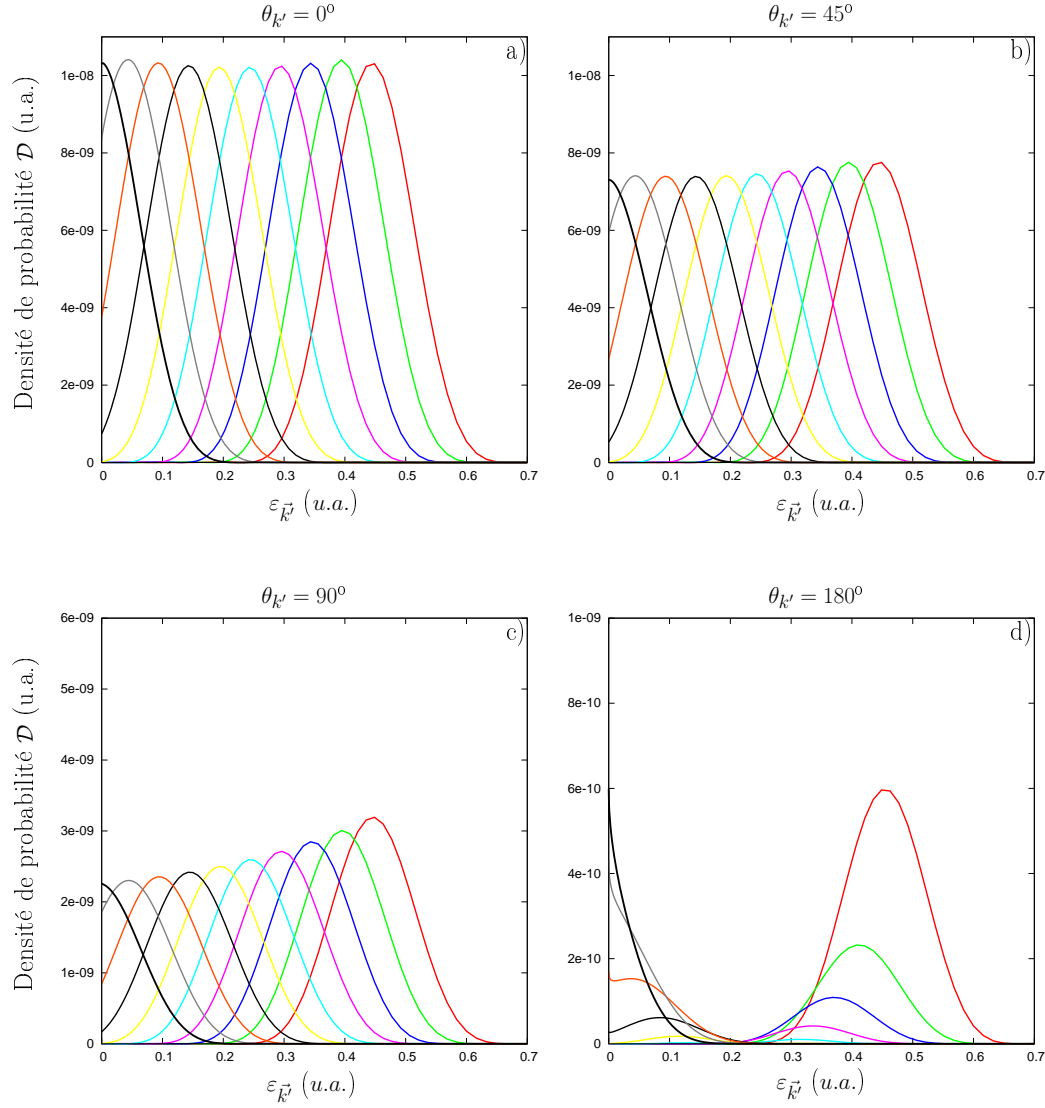
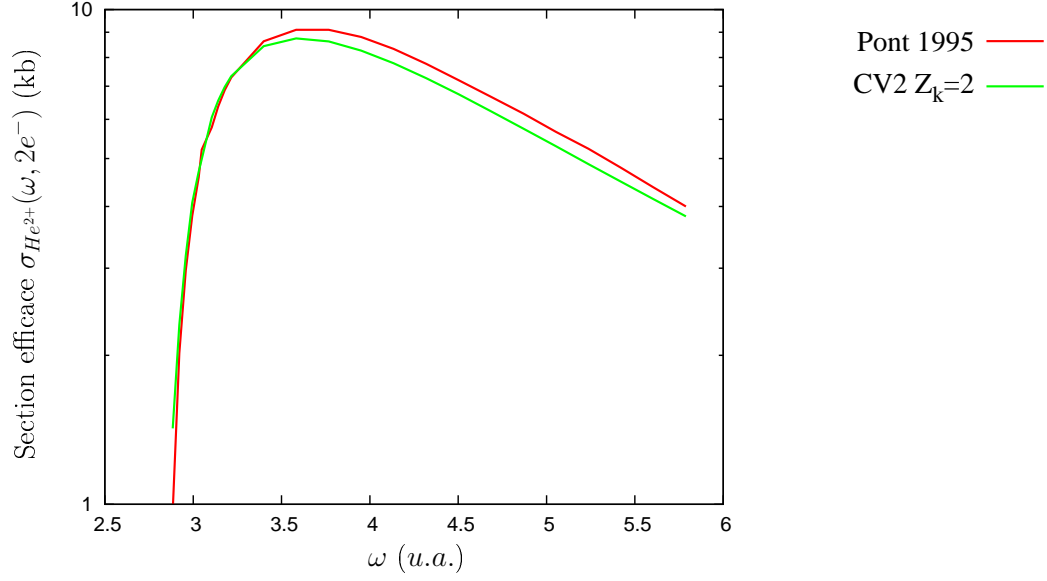


FIG. 4.7 – Distribution CV2 en énergie de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé $\omega = 3,3$ u.a., $E_0 = 10^{-3}$ u.a., (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

FIG. 4.8 – Section efficace totale de DPI ω calculée par CV2.

4.3.2 Double ionisation à deux photons

Il s'agit des mêmes calculs que précédemment, adaptés aux transitions à deux photons. Par analogie, analysons quels sont les processus décrits par notre développement CV2. Pour cela, reprenons de la même manière les expressions (2.57). La première possibilité pour que des transitions à deux photons aient lieu, consiste à développer la première exponentielle à l'ordre 0 puis la seconde à l'ordre 1

$$\begin{aligned}
 & \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1\right) r_1 \cos\theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\
 & \xrightarrow{\text{ordre 0}} \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos\theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\
 & \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2\right) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
 & \xrightarrow{\text{ordre 1}} \left(-i\frac{\partial}{\partial t}\right) E(t) \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos\theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2)
 \end{aligned} \tag{4.15}$$

où l'on voit apparaître l'absorption d'un photon par chaque électron, mécanisme correspondant au TS2 (cf. §4.2.2). Ce processus produit deux électrons de symétrie p et le canal le représentant est $(0, 0) \xrightarrow{2\omega} (1, 1)$. La seconde pos-

sibilité est le développement de la première exponentielle à l'ordre 1 puis la seconde à l'ordre 0

$$\begin{aligned}
 & \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1\right) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\
 & \xrightarrow{\text{ordre 1}} \left(-i\frac{\partial}{\partial t}\right) E(t) \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) (r_1 \cos \theta_1)^2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\
 & \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2\right) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\
 & \xrightarrow{\text{ordre 0}} \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}(\vec{r}_2)
 \end{aligned} \tag{4.16}$$

ce qui décrit, comme pour le cas à un photon, l'éjection d'un électron par absorption de deux photons et le recouvrement de l'autre électron résiduel avec un état du continuum. Ici, ce processus produit un électron de symétrie s et un autre de symétrie s ou d (absorption de deux photons). Les canaux correspondants sont $(0, 0) \xrightarrow{2\omega} (0, 0)$ et $(0, 0) \xrightarrow{2\omega} (0, 2)$. Si les fonctions d'onde (initiales et finales) sont toutes calculées avec $Z = 2$, l'orthonormalité des fonctions d'onde dans la calcul de l'intégrale à l'ordre 0 de (4.16) impose que ce mécanisme d'absorption de deux photons soit nul.

Distribution angulaire

Comme nous l'avons souligné, les seuls résultats sur lesquels nous nous appuyons dans ce cas sont théoriques. Cependant, une tendance se dégage car en polarisation linéaire, l'émission du deuxième électron se fait préférentiellement à l'opposé du premier [199, 201, 202]. Nous ne retrouvons cette tendance que pour le cas à $\theta_k = 0^\circ$ avec une faible distribution orientée dans la direction du premier électron (cf. FIG. 4.9 a)). A l'instar du cas à un photon, changer θ_k n'affecte que la magnitude des lobes l'orientation privilégiée étant toujours l'axe de polarisation (cf. FIG. 4.9 b)). Le cas à $\theta_k = 90^\circ$ est symptomatique puisqu'une éjection préférentielle se fait dans l'axe défini par l'éjection du premier électron, perpendiculairement à l'axe de polarisation (cf. FIG. 4.9 c)). Les lobes que l'on prédit ne sont donc plus du tout en accord avec les calculs présentés dans les articles référencés plus haut. Ces profils angulaires suggèrent, comme dans le cas à un photon, qu'une configuration en \cos^2 issue d'une symétrie p est responsable de cette répartition. La production d'une telle symétrie dans l'état final ne peut être que la conséquence du processus d'absorption d'un photon par chaque électron (TS2) c'est-à-dire le canal $(0, 0) \xrightarrow{2\omega} (1, 1)$. Dans ce cas, le profil devrait être strictement

symétrique. C'est ce qui est vérifié par les FIG. 4.9 e) et f) où l'on a arbitrairement posé la charge nucléaire de l'état initial égale à 2 (à mettre en lien avec les FIG. 4.9 a) et b)). Ainsi, le recouvrement à l'ordre 0 de (4.16) s'annule du fait de l'orthogonalité des fonctions d'onde. On élimine de fait le processus d'absorption de deux photons par un électron puis le recouvrement de l'électron résiduel vers le continuum. Ainsi, le profil général des distributions angulaires est donné globalement par le TS2 mais la présence même faible de ce second processus à deux photons induit une dissymétrie. Nous mettons ainsi en lumière le rôle très important des corrélations radiales dans l'état initial et nous verrons également leur influence dans l'état final.

Distribution en énergie

Hormis le cas très défavorable à $\theta_{k'} = 90^\circ$, les distributions en énergie montrent une relative homogénéité, les cas extrêmes étant légèrement favorisés pour $0^\circ > \theta_{k'} > 90^\circ$ (cf. FIG. 4.10 a)). A propos de cette même figure, nous remarquons que les cas à l'équipartition (partie centrale) bien que moins importants, sont présents. Cela signifie que les cas où les deux électrons sont éjectés dans la même direction et avec la même énergie existent également. Nous pouvons noter qu'à partir de $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 4.10 b)), la tendance s'inverse et c'est la partie centrale de la distribution qui est privilégiée (cf. FIG. 4.10 c)). Nous pouvons constater que c'est encore la présence du processus secondaire à deux photons qui est responsable du profil prononcé aux extrémités, car s'il l'on compare aux cas où l'on a extrait ce processus en posant comme au paragraphe précédent $Z_i = 2$, ce phénomène est moindre (cf. FIG. 4.10 d) et e) à mettre en lien avec les FIG. 4.10 a) et b)). De plus, il est aussi responsable du changement de tendance au-delà de $\theta_{k'} = 90^\circ$ puisque le TS2 seul ne favorise pas l'équipartition (cf. FIG. 4.10 f) à mettre en lien avec la FIG. 4.10 c)).

Section efficace

Les résultats que nous avons reportés sur la FIG. 4.11 montrent deux tendances. D'une part, une collection de résultats indique une certaine convergence : R-matrice [197], base de fonctions Sturmienne [198], base de B-splines [198], TDCC [199] et CCC dépendante du temps [202]. D'autre part, une méthode fondée sur la J-matrice [200] et sur la théorie des perturbations dépendante du temps à l'ordre le plus bas [179] se situent au-dessus de ce groupement. Enfin, les deux résultats expérimentaux disponibles [6] et [3] donnent un point dans la première région de résultats et un autre au milieu des deux groupes. Nous voyons très clairement que les calculs CV2 sont en

deçà de toute cette collection de résultats. C'est indéniablement une preuve supplémentaire de la nécessité d'améliorer la description. Contrairement au cas à un photon où les corrélations ont un faible impact sur la section efficace totale, il semble qu'elles jouent un rôle dominant à deux photons. Dans quelle mesure interviennent-elles est une question à laquelle nous essaierons de répondre. De plus, il ne faut pas oublier que l'absence des états intermédiaires peut expliquer pourquoi les résultats CV2 sous-estiment les autres calculs et les données expérimentales. Leur contribution reste également à évaluer.

4.3.3 Conclusion

Nous constatons que différents degrés d'analyse se distinguent. La section efficace totale à un photon ($\text{DPI}\omega$) ne nécessitant par exemple pas une description très détaillée pour obtenir de bons résultats. A contrario, dès que l'on s'intéresse aux distributions en angle et en énergie, il est absolument indispensable de prendre en compte les corrélations angulaires en particulier pour reproduire correctement la structure en lobe. En effet, la répulsion électrostatique interdit certaines configurations et mène à des figures d'éjections où des orientations sont privilégiées. Pour le cas à deux photons ($\text{DPI}2\omega$), les distributions angulaires et énergétiques ne sont pas satisfaisantes dans cette formulation de base. La même raison est à invoquer, des cas non-physiques sont décrits dus à l'absence de corrélations angulaires. La section efficace totale est inférieure aux résultats déjà existants, les corrélations mais également la contribution des états intermédiaires peuvent expliquer cette différence. S'il l'on veut poursuivre l'étude de l'ionisation double de l'hélium, il est alors crucial d'améliorer la modélisation. La première voie d'exploration que nous avons entamée est celle des corrélations. Principalement pour permettre de ne plus décrire des résultats non physiques, prendre en compte le processus TS1 (majeur à un photon) puisqu'il est issu de l'interaction {électron-électron} et évaluer la contribution directe des différents types de corrélations sur les quantités que l'on étudie.

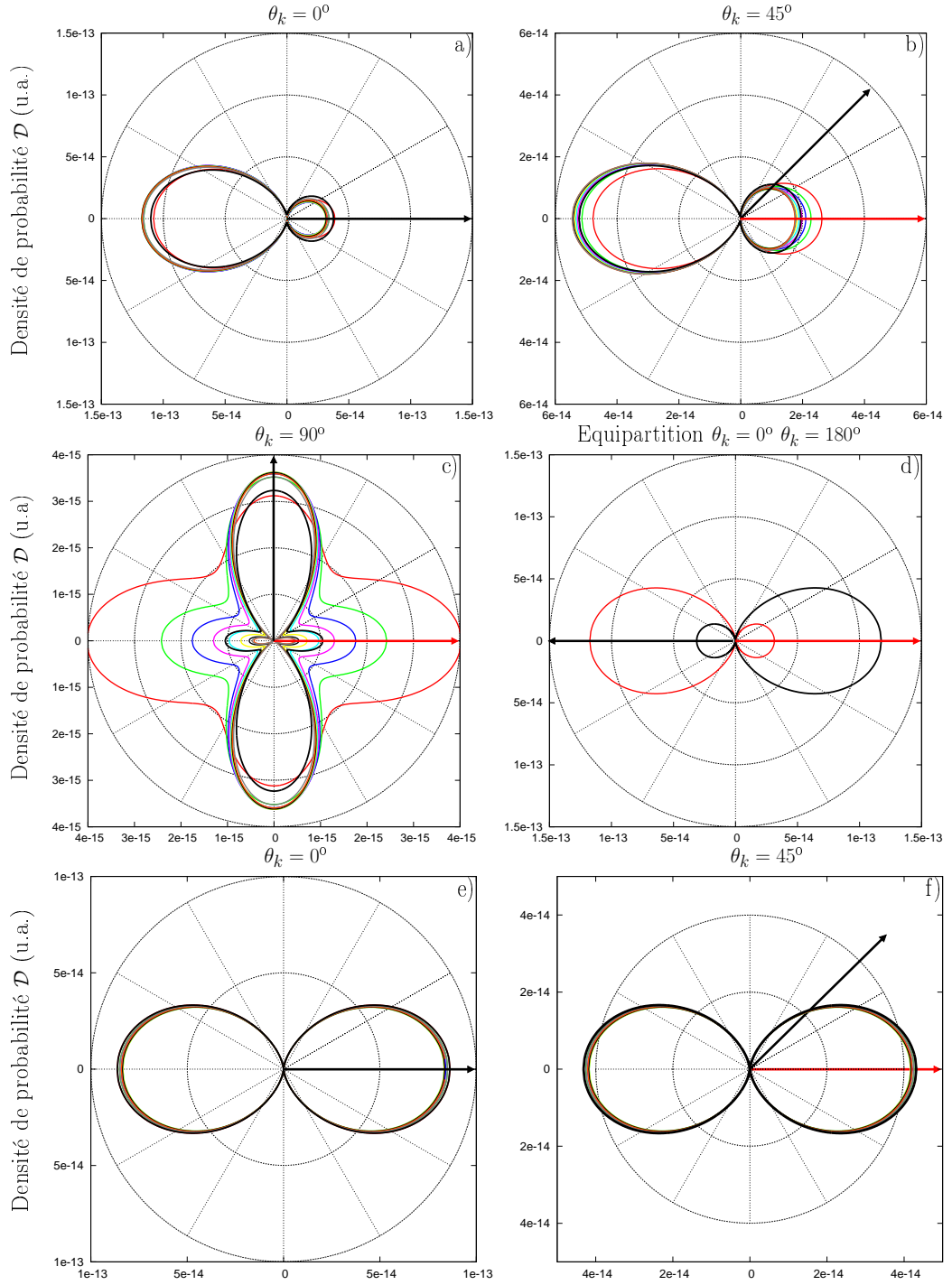


FIG. 4.9 – Distribution CV2 en angle de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé, $Z_i = 1,6875$ pour a), b), c) et d), $Z_i = 2$ pour e) et f), $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

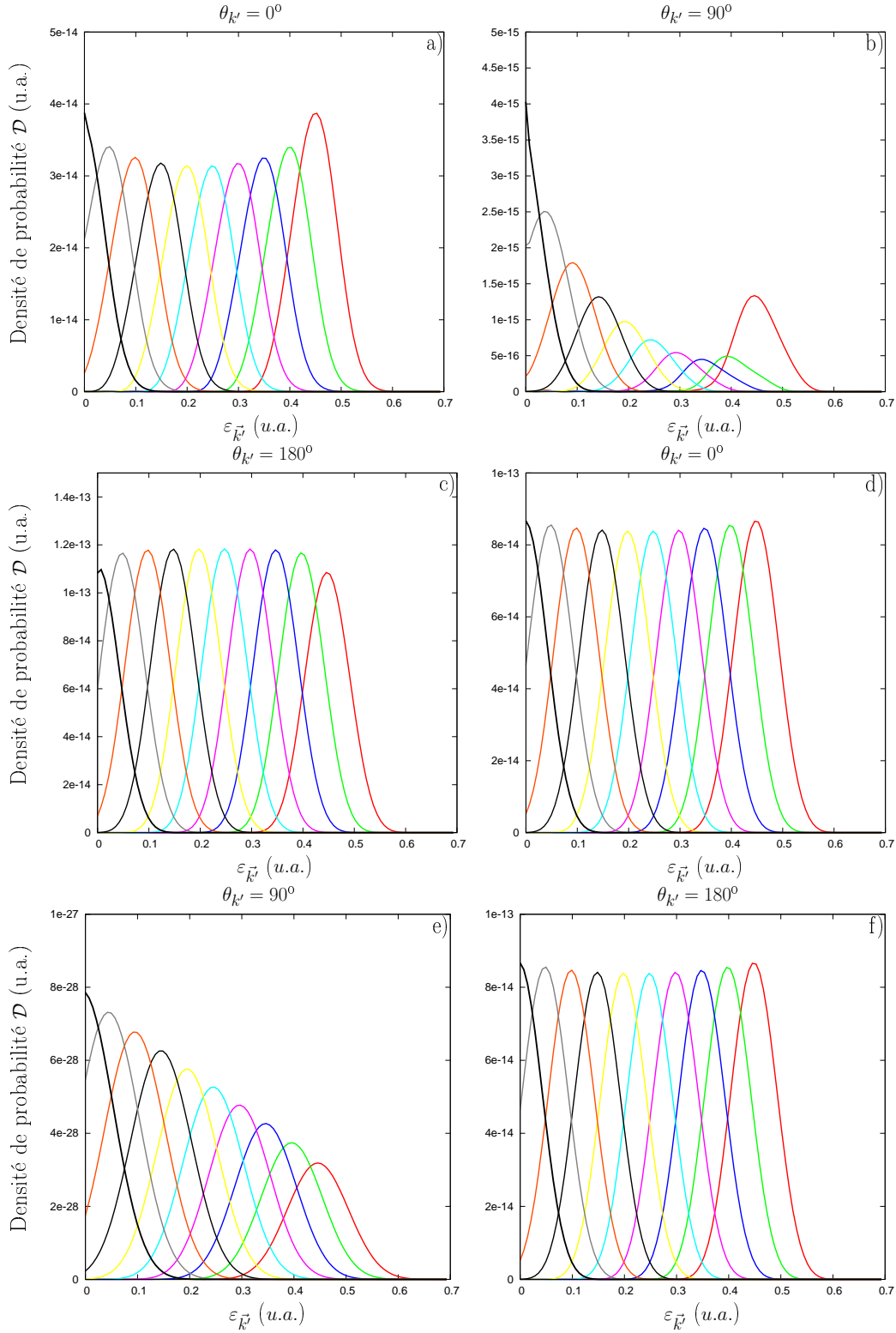
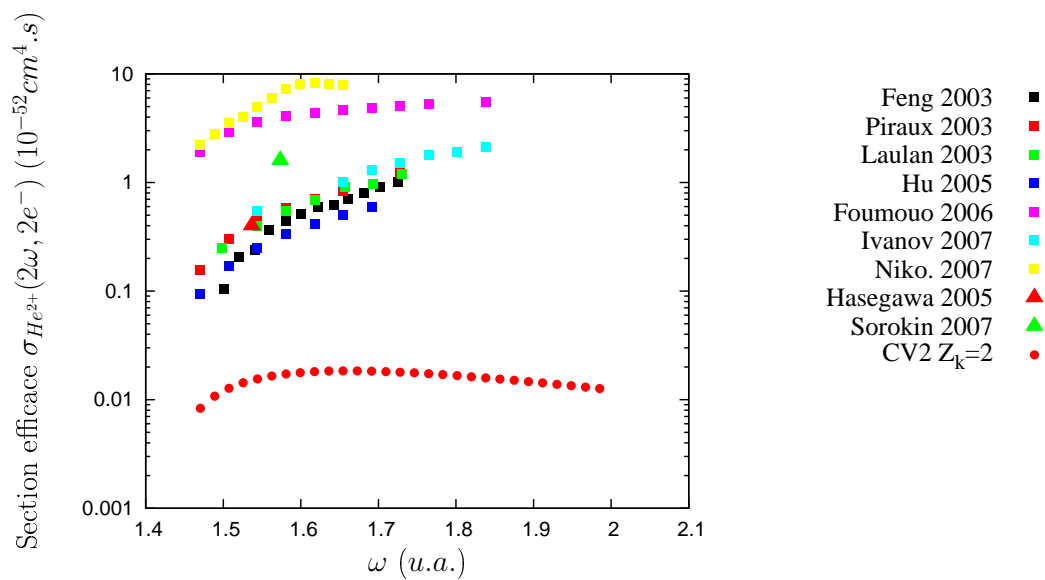


FIG. 4.10 – Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé, $Z_i = 1,6875$ pour a), b) et c), $Z_i = 2$ pour d), e) et f), $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

FIG. 4.11 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par CV2.

Chapitre 5

Les rôle des corrélations électroniques dans l'état final

5.1 Introduction

DANS ce chapitre, nous allons explorer deux approches qui se prêtent au contexte Coulomb-Volkov. La première reproduit les corrélations électroniques dans l'état final à l'ordre 0 au moyen d'un écrantage de la charge nucléaire dépendant des vecteurs d'onde de chacun des électrons dans le double continuum. La seconde décrit directement via une onde Coulombienne (dépendant également des vecteurs d'onde) l'interaction répulsive entre chacun des électrons, et inclut les corrélations angulaires. Dans notre modèle de base, les électrons du double continuum subissent l'influence de champs Coulombiens créés par des charges nucléaires référencées Z_k , $Z_{k'}$ et égales à 2. Il nous permet toutefois de choisir arbitrairement la valeur de chacune d'elles et par ce biais, nous allons pouvoir mettre en lumière l'influence des corrélations à l'ordre 0.

5.2 Le modèle à charges variables

La mise en place d'un système de charges ne dépendant que de la vitesse d'éjection (ou de l'énergie cinétique) de chaque électron constitue la première étape du processus d'étude des corrélations. L'hypothèse sur laquelle on se fonde est la suivante

HYPOTHÈSE 6 (LA CHARGE ÉCRANTÉE)

Un électron éjecté avec une vitesse supérieure à l'autre, subira globalement l'influence d'un champ Coulombien écranté par l'électron le moins rapide

Ce qui peut être facilement compris d'un point de vue électrostatique par le théorème de Gauss. Ainsi, un modèle dit « variable » dépendant seulement de la norme des vecteurs d'onde et donc de la vitesse de chacun des électrons, a été mis en place. Il s'agit d'une première approche pour mesurer très largement la contribution des corrélations électroniques. Nous allons appliquer la condition suivante sur les charges nucléaires lors du calcul de l'amplitude de transition, son expression finale restant inchangée.

$$\begin{cases} Z_k = 1 & \text{et} & Z_{k'} = 2 & \text{si} & k > k' \\ Z_k = 2 & \text{et} & Z_{k'} = 1 & \text{si} & k < k' \end{cases} \quad (5.1)$$

L'idée est d'avoir une procédure qui puisse s'affranchir d'un choix arbitraire des charges nucléaires comme celui des charges asymptotiques $Z_k = Z_{k'} = 2$ tout en reflétant une situation physique plus crédible. Cependant, nous ne nous attendons pas à obtenir de bons résultats à propos des distributions car aucune dépendance angulaire n'est prise en compte. C'est pour cette raison que nous ne présenterons pas de graphes à ce propos, d'autant que nous avons effectivement vérifié qu'aucune amélioration sensible n'est à constater.

5.2.1 Double ionisation à un photon : la section efficace

Clairement, le modèle variable produit des sections efficaces très surestimées d'environ un ordre de grandeur par rapport au cas sans corrélations (cf. FIG. 5.1). Ceci démontre la très grande dépendance des calculs vis-à-vis de la charge nucléaire et en particulier des effets d'écran. Nous pouvons comprendre ces résultats car le recouvrement à l'ordre 0 intervenant dans (4.16) se fait maintenant entre deux fonctions d'onde présentant des charges $Z_i = 1,6875$ et $Z_k = 1$ ou 2. Nous avons par ailleurs vérifié que ce recouvrement est plus élevé dans le cas où $Z_k = 1$, ainsi les résultats pour les sections efficaces sont globalement supérieurs. Le choix des charges s'avère être un élément crucial et ces résultats tendent à nous faire penser qu'un système de corrélations fondé sur un écrantage de la charge nucléaire ne représenterait pas correctement la $DPI\omega$. Ceci soulève donc une question : y aurait-il un optimum dans le choix des charges nucléaires ? En effet, il semble dans ce cas suffisant d'utiliser $Z_k = Z_{k'} = 2$ si l'on est intéressé par la section efficace à un photon.

5.2.2 Double ionisation à deux photons : la section efficace

Le calcul de la section efficace présente une amélioration considérable (cf. FIG. 5.2). Le calcul CV2 à charges variables présente un gain d'environ un

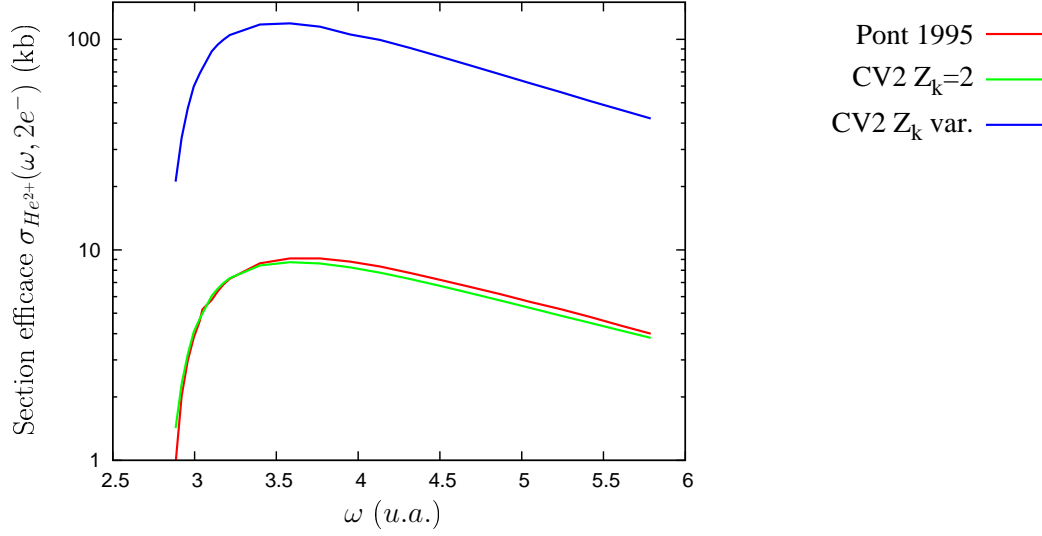


FIG. 5.1 – Section efficace totale de $\text{DPI}\omega$ calculée par CV2 et écrantage de charge variable dans l'état final.

facteur huit par rapport au calcul de base. Ceci est tout à fait intéressant car rapproche les calculs de la « collection » de résultats. Ces résultats montrent que les corrélations d'ordre 0 jouent un rôle déterminant dans le cas à deux photons. Cependant, tout comme le cas à un photon, la difficulté vient du choix des charges : ce système variable étant à priori très grossier, regarder un choix plus fin permettrait d'améliorer la section efficace. Nous pouvons toutefois rapprocher nos résultats de ceux données dans [201]. Les auteurs emploient une méthode CCC corrélée et remplacent la contribution de tous les états intermédiaires par une relation de fermeture [202]. Les résultats ainsi calculés sont du même ordre de grandeur que les nôtres bien qu'inférieurs d'un facteur 2. Nous observons ainsi que par rapport à un calcul sans écrantage dans l'état final, leur prise en compte s'avère déterminante et leur contribution d'environ un ordre de grandeur.

5.2.3 Conclusion

Il est très surprenant d'observer que la mise en œuvre du modèle de corrélations variables mène à des comportements opposés entre les cas à un et deux photons. Néanmoins il permet de se rendre compte de l'influence du choix des charges nucléaires différents dans chacun des cas. Nous avons vu que les corrélations à l'ordre 0 (écrantage des charges dans le double continuum) jouent un rôle important pour les sections efficaces totales de $\text{DPI}\omega$

et $\text{DPI}2\omega$. Pour la $\text{DPI}\omega$, on s'écarte du résultat correct alors que l'on se rapproche des valeurs déjà calculées pour la $\text{DPI}2\omega$. Néanmoins, dans ce dernier cas la pente des sections efficaces ne correspond pas et nous pouvons nous demander si l'augmentation de la section efficace est due à une meilleure représentation physique du double continuum ou à un effet numérique, comme pour la $\text{DPI}\omega$. Ceci nous encourage donc à raffiner notre modèle pour représenter les corrélations électroniques dans le double continuum.

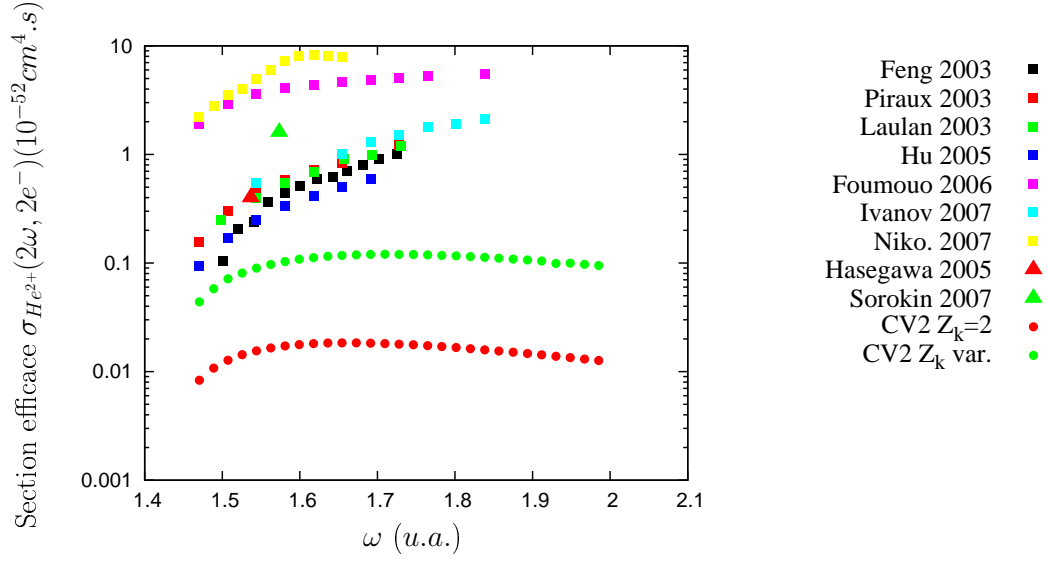


FIG. 5.2 – Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par CV2 et corrélations variables dans l'état final.

5.3 Les corrélations électroniques : le modèle des charges écrantées 2SC

La seconde approche va permettre d'aller plus finement dans le détail du choix des charges en ne considérant non plus uniquement un écrantage fonction de la valeur de l'impulsion k ou k' (norme du vecteur \vec{k} ou \vec{k}') mais aussi les angles d'éjections. Cette démarche est directement issue de l'article de D. Proulx et R. Shakeshaft [166] et peut être résumée par des corrections Δ à apporter aux charges nucléaires initiales

$$\begin{cases} Z_k = 2 - \Delta_k \\ Z_{k'} = 2 - \Delta_{k'} \end{cases} \quad (5.2)$$

où ces corrections dépendant de \vec{k} et \vec{k}' sont définies comme il suit

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta_k = \frac{[\vec{k} \cdot (\vec{k} - \vec{k}')] \times k}{\|\vec{k} - \vec{k}'\|^3} \\ \Delta_{k'} = \frac{[\vec{k}' \cdot (\vec{k}' - \vec{k})] \times k'}{\|\vec{k}' - \vec{k}\|^3} \end{array} \right. \quad (5.3)$$

Cette méthode initiée par M.R.H. Rudge et M.J. Seaton [209] a l'avantage de remplir les conditions asymptotiques définies par Peterkop [210]. Nous pouvons la réécrire en utilisant nos notations

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta_k = \frac{k^3 - k^2 k' (\sin \theta_k \sin \theta_{k'} \cos \Phi + \cos \theta_k \cos \theta_{k'})}{[k^2 + k'^2 - 2kk' (\sin \theta_k \sin \theta_{k'} \cos \Phi + \cos \theta_k \cos \theta_{k'})]^{3/2}} \\ \Delta_{k'} = \frac{k'^3 - k'^2 k (\sin \theta_k \sin \theta_{k'} \cos \Phi + \cos \theta_k \cos \theta_{k'})}{[k^2 + k'^2 - 2kk' (\sin \theta_k \sin \theta_{k'} \cos \Phi + \cos \theta_k \cos \theta_{k'})]^{3/2}} \end{array} \right. \quad (5.4)$$

Il est à noter que la densité de probabilité dépend de ϕ_k et $\phi_{k'}$ par l'intermédiaire de $\Phi = \phi_k - \phi_{k'}$. Cet angle mesure l'écart entre chaque plan d'éjection. Comme nous l'avons déjà précisé, l'étude des distributions se place en géométrie coplanaire, c'est-à-dire $\Phi = 0^\circ$. Cependant, pour le calcul de la probabilité totale, l'intégration sur ϕ_k et $\phi_{k'}$ doit être effectuée. Nous allons remplacer ces deux intégrales successives coûteuses en temps de calcul par une seule sur Φ en utilisant le changement de variable suivant

$$\begin{array}{l} \phi_k \longrightarrow \phi_k \\ \phi_{k'} \longrightarrow \Phi = \phi_k - \phi_{k'} \end{array} \quad (5.5)$$

Les intégrations s'écrivent ensuite sous la forme

$$\int_0^{2\pi} d\phi_k \int_0^{2\pi} d\phi_{k'} \longrightarrow \int_0^{2\pi} d\phi_k \int_0^{2\pi} d\Phi \det(J) \quad (5.6)$$

où J est la matrice Jacobienne suivante

$$J = \begin{pmatrix} \frac{\partial \phi_k}{\partial \phi_k} & \frac{\partial \phi_k}{\partial \Phi} \\ \frac{\partial \Phi}{\partial \phi_k} & \frac{\partial \Phi}{\partial \phi_{k'}} \end{pmatrix} \quad (5.7)$$

dont le déterminant vaut $\det(J) = 1$. Finalement, les intégrations deviennent

$$\int_0^{2\pi} d\phi_k \int_0^{2\pi} d\phi_{k'} \longrightarrow 2\pi \int_0^{2\pi} d\Phi \quad (5.8)$$

ce qui permet d'économiser une procédure d'intégration. Précisons à ce propos que les résultats qui suivent seront tous évalués pour une géométrie coplanaire correspondant à $\Phi = 0^\circ$.

5.3.1 Double Ionisation à un photon

Distribution angulaire

Les profils d'éjection se trouvent considérablement affectés par cette nouvelle formulation des corrélations dans l'état final (cf. FIG. 5.3). De manière générale, on peut constater que l'éjection du second électron se fait toujours sensiblement dans le demi-plan d'éjection du premier électron. Cependant, une structure en lobe se dégage symétriquement par rapport à la direction d'éjection du premier électron. Cependant, les cas où l'éjection du second se fait strictement dans la même direction et avec une énergie proche est sinon interdite du moins fortement atténuée (cf. FIG. 5.3 a)). C'est une avancée intéressante dans le sens où des situations non-physiques sont partiellement évitées. Ces structures s'expliquent par le fait que pour les cas les plus dramatiques (même direction d'éjection, même énergie) la valeur de la correction sur les charges nucléaires calculées par (5.3) tend vers l'infini. Ainsi, pour ces configurations, les charges nucléaires issues de (5.2) sont également très grandes. Le recouvrement à cet endroit est alors très petit et mène au creusement du profil angulaire. Les lobes qui en résultent sont donc des réminiscences d'une symétrie p pour laquelle les configurations non physiques sont simplement éliminées. Il reste cependant toujours le problème de l'orientation qui n'est pas correcte (cf. FIG. 5.3 b) et c)), en particulier à l'équipartition (cf. FIG. 5.3 d)) où les lobes doivent être préférentiellement orientés vers l'arrière. Nous vérifions tout de même que pour ce cas, l'émission du second électron à $\theta_{k'} = 180^\circ$ pour le premier émis à $\theta_k = 0^\circ$ n'existe pas (courbe rouge).

Distribution en énergie

Les distributions en énergie présentent quant à elles un tout autre comportement que précédemment (cf. FIG. 5.4). Le cas $\theta_{k'} = 0^\circ$ (cf. FIG. 5.4 a)) présente un profil où l'un des électrons emporte la quasi-totalité de l'énergie en excès laissant l'autre avec une énergie proche de zéro. Cependant, jusqu'à $\theta_{k'} = 90^\circ$ il n'y a plus de tendance très claire qui se dégage même si

les cas où des électrons de plus haute énergie semblent relativement favorisés (cf. FIG. 5.4 b)). Nous constatons tout de même que l'homogénéité autour de l'équipartition telle qu'elle était présente auparavant n'existe plus. Puis, pour et au-delà de $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 5.4 c) et d)) nous retrouvons, comme pour le cas non corrélé, une prépondérance plus marquée pour la configuration $\varepsilon_{k'} = 0,45 \text{ u.a.}$ (courbe rouge).

Section efficace

La section efficace (cf. FIG. 5.5) est du même ordre de grandeur que le système variable, avec une sous-estimation pour les plus basses énergies. Nous pouvons supposer que le système 2SC procède à une répartition différente de la probabilité totale. Asymptotiquement, les deux formulations semblent converger. Globalement, le système reste très affecté par un choix arbitraire ou non des charges et nous pouvons définitivement conclure que l'utilisation de charges écrantées ne convient pas à la section efficace à un photon, le choix $Z_i = 1,6875$ et $Z_k = Z_{k'} = 2$ reste donc un optimum pour une description simple de la DPI.

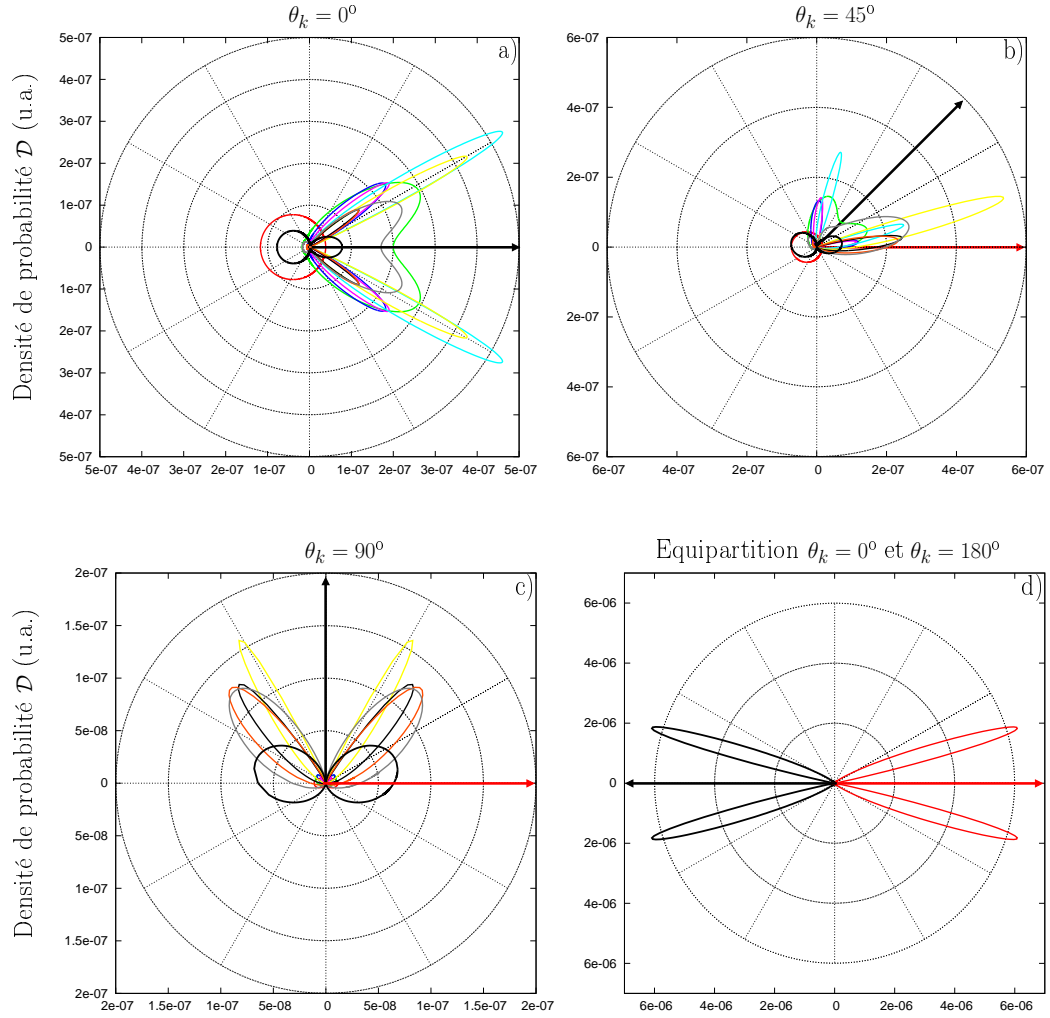


FIG. 5.3 – Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 2SC dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

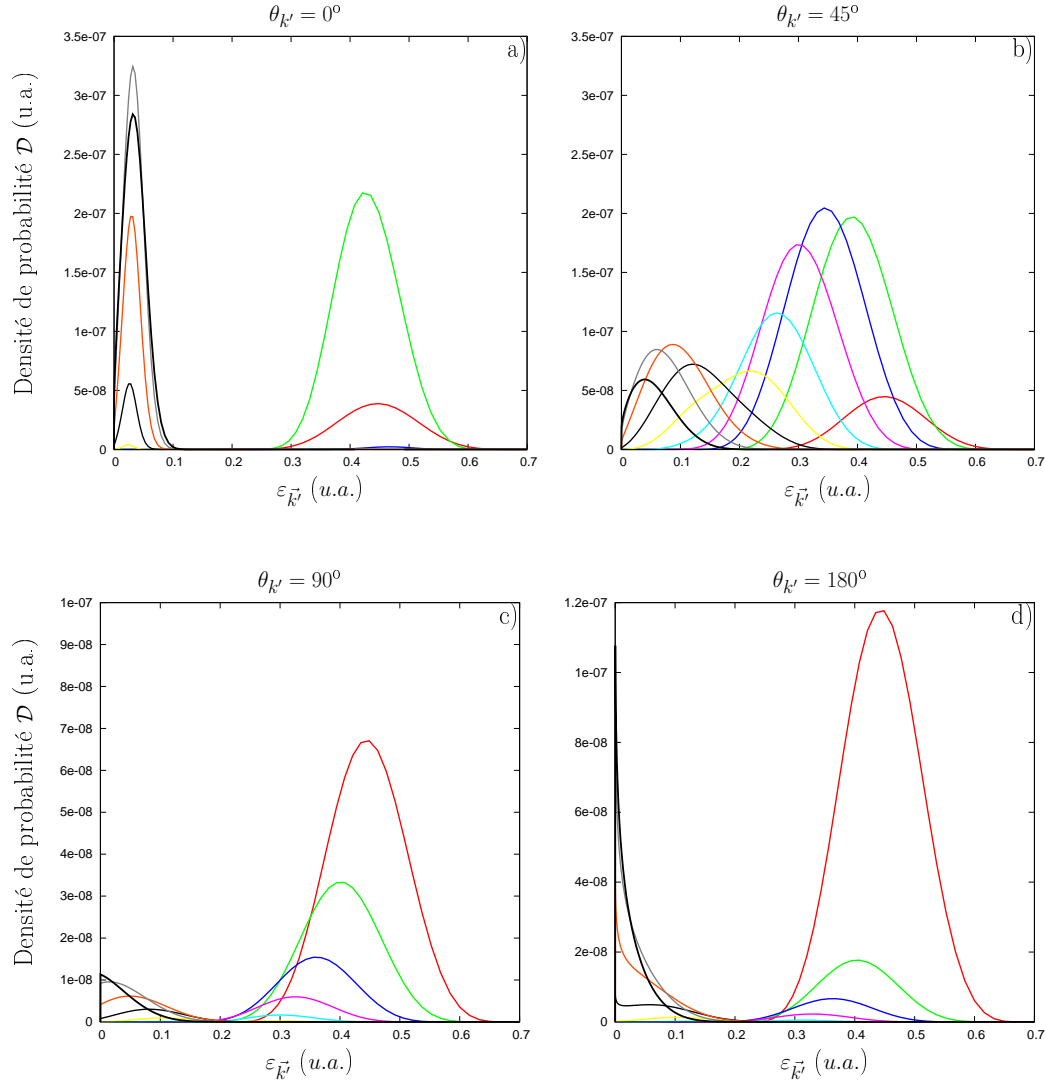


FIG. 5.4 – Distribution CV2 en énergie de la DPl ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 2SC dans l'état final, $\omega = 3,3 u.a.$, $E_0 = 10^{-3} u.a.$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

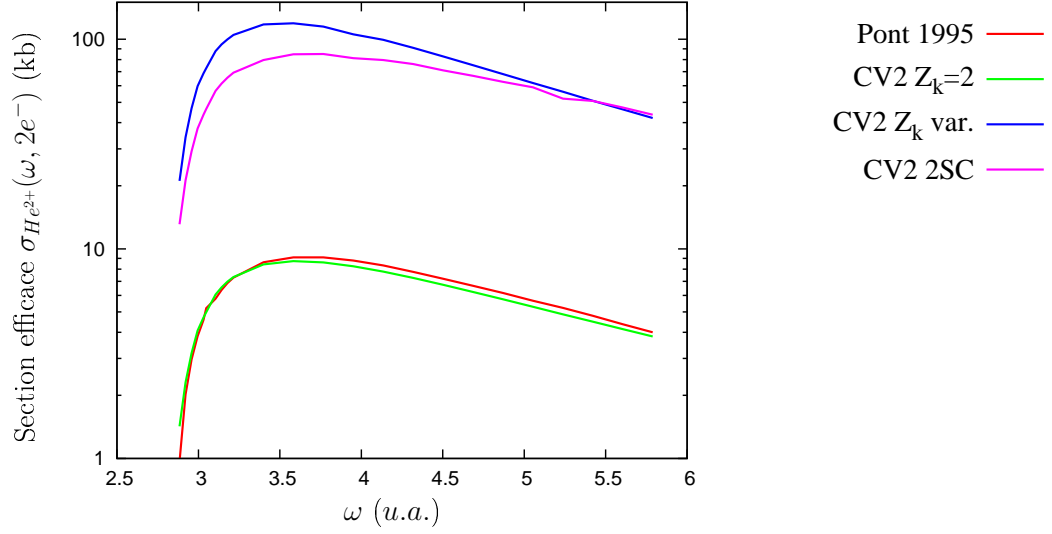


FIG. 5.5 – Section efficace totale de $\text{DPI}\omega$ calculée par CV2 avec corrélations 2SC dans l'état final.

5.3.2 Double ionisation à deux photons

Distribution angulaire

Les distributions angulaires présentent des similitudes assez fortes avec le cas à un photon. Là où elles étaient très différentes dans le calcul de base, leur comportement révèle maintenant des ressemblances. De la même manière qu'à un photon, les cas non-physiques sont fortement atténués en particulier pour des configurations proches de l'équipartition et de l'éjection dans la même direction. Cependant, le même constat est à faire, l'orientation n'est toujours pas satisfaisante et l'on tire la même conclusion : il s'agit de réminiscences de lobes auxquels les valeurs très importantes des charges interdisent certaines configurations. C'est pour cette raison que nous ne présentons pas de graphes concernant ce point.

Distribution en énergie

Nous pouvons remarquer à propos des distributions en énergie (cf. FIG. 5.6) que le cas à $\theta_{k'} = 0^\circ$ présente tout comme le cas à un photon, une structure où les contributions proches de l'équipartition n'existent plus (cf. FIG. 5.6 a)). Puis, pour $\theta_{k'} = 45^\circ$, une dominante se dégage pour le cas où l'un des électrons emporte une énergie importante mais non maximum, en même temps

que se creuse les contributions autour de l'équipartition (cf. FIG. 5.6 b)). Ce comportement s'accroît jusqu'à $\theta_{k'} = 90^\circ$ où les deux configurations extrêmes sont prépondérantes (cf. FIG. 5.6 c)). Au-delà de $\theta_{k'} = 90^\circ$, le profil général est bien différent puisqu'au fur et à mesure que $\theta_{k'}$ augmente, l'ensemble des contributions centrales s'élève et se nivelle (cf. FIG. 5.6 d)). Cette tendance a déjà observée pour le cas non-corrélé, cependant les cas extrêmes $\varepsilon_{\vec{k}} = 0 \text{ u.a.}$ et $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0,45 \text{ u.a.}$ sont toutefois favorisés.

Section efficace

Nous vérifions cette fois encore que la probabilité totale de double ionisation est simplement redistribuée par rapport au cas à charges variables (cf. FIG. 5.7). Bien que l'on puisse constater que les résultats soient légèrement inférieurs pour $\omega < 45 \text{ eV}$ et légèrement supérieurs pour $\omega > 45 \text{ eV}$ l'ordre de grandeur est similaire entre ces deux modèles. Nous pouvons tout de même nous interroger sur l'impact de l'écrantage à deux photons. Il apparaît comme très important de considérer d'une manière ou d'une autre l'effet de la répulsion électrostatique pour une bonne description de la section efficace à deux photons.

5.3.3 Conclusion

Les résultats obtenus nous mènent à reconsidérer la description des corrélations par d'autres moyens que l'écrantage. Il s'avère que l'application directe du modèle 2SC à une méthode Coulomb-Volkov dépendante du temps ne soit pas triviale. A l'origine, D. Proulx et R. Shakeshaft transforment une partie de leur amplitude de transition en une intégrale de surface, évaluée dans une région où le mouvement des électrons est considéré classiquement, et projettent après interaction sur un état final présentant les charges calculées par 2SC. Dans notre cas, l'élément de transition est calculé à chaque pas de temps, tout au long de l'interaction. Le calcul des charges nucléaires n'est donc certainement pas adapté à une description dynamique de l'interaction en particulier pour les distributions angulaires. Une fois de plus, la question du choix d'une charge écrantée est soulevée car elle reste d'une importance fondamentale pour bien décrire la section efficace à deux photons. Dans le prochain paragraphe, nous allons conserver la description du double continuum avec les charges asymptotiques $Z_k = Z_{k'} = 2$, mais inclure un facteur représentant directement la répulsion électrostatique.

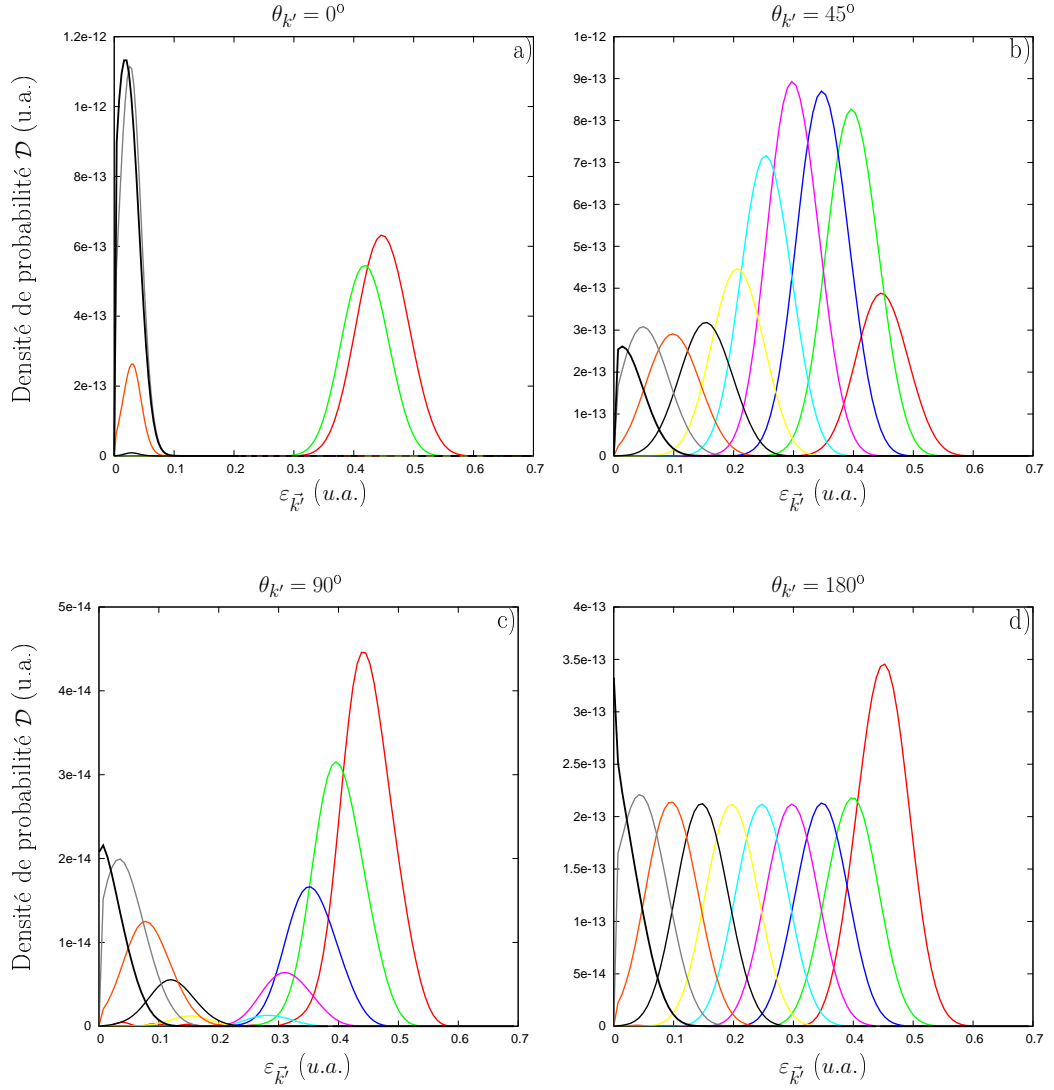


FIG. 5.6 – Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 2SC dans l'état final, $\omega = 1,65 u.a.$, $E_0 = 10^{-3} u.a.$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

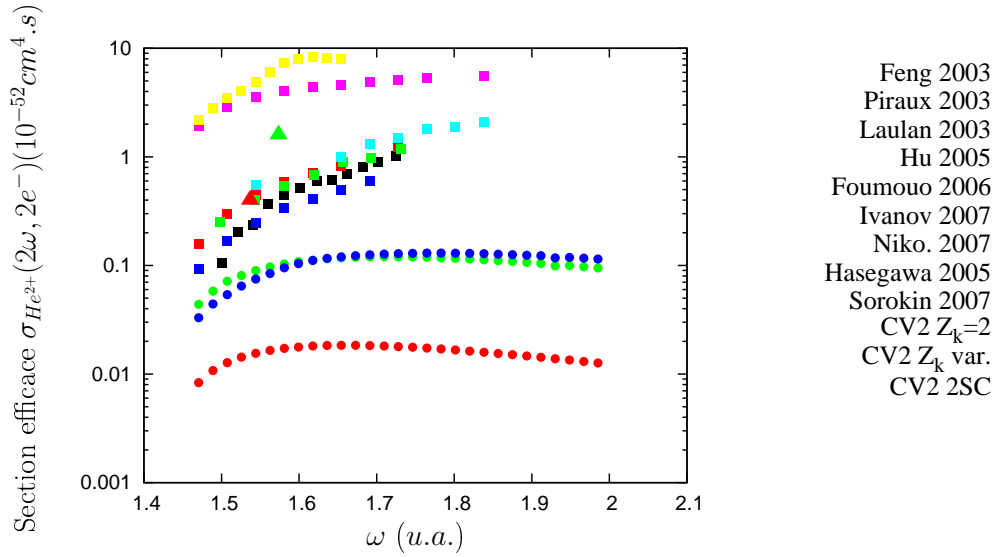


FIG. 5.7 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par CV2 avec corrélations 2SC dans l'état final.

5.4 Les corrélations électroniques : le modèle à trois fonctions Coulombiennes

A présent, nous allons représenter l'interaction entre électrons dans le double continuum au-travers d'une fonction d'onde Coulombienne. Initiée par M. Brauner, J.S. Briggs et H. Klar [172] pour le calcul des sections efficaces différentielles angulaires d'ionisation de l'hydrogène par impact d'électrons et de positrons, elle se révèle dans ce cas en très bon accord avec l'expérience [211]. Il s'agit en définitive de décrire l'état final par un produit de trois ondes Coulombiennes (dénommée ainsi 3C) telles que

$$\begin{aligned} \Psi_{3C} = & (2\pi)^{-3} \exp \left[i(\vec{k} \cdot \vec{r} + \vec{k}' \cdot \vec{r}') \right] \\ & \times \prod_{j=1}^3 \exp \left(-\frac{\pi\alpha_j}{2} \right) \Gamma(1 - i\alpha_j) {}_1F_1 \left(i\alpha_j; 1; ik_j r_j - i\vec{k}_j \cdot \vec{r}_j \right) \end{aligned} \quad (5.9)$$

où

$$\left\{ \begin{array}{lll} j = 1 & \vec{k}_1 = \vec{k} & \alpha_1 = -\frac{Z_k}{k} \\ j = 2 & \vec{k}_2 = \vec{k}' & \alpha_2 = -\frac{Z_{k'}}{k'} \\ j = 3 & \vec{k}_3 = \frac{|\vec{k}' - \vec{k}|}{2} & \vec{r}_3 = \vec{r}_2 - \vec{r}_1 \quad \alpha_3 = \frac{1}{2k_3} \end{array} \right. \quad (5.10)$$

Son application au calcul de la distribution angulaire pour la double photo-ionisation de l'hélium permet de décrire cette structure en lobes caractéristiques [168]. De très bons résultats sont obtenus par comparaison avec les données expérimentales fournies par O. Schwarzkopf *et al.* [189] utilisant un rayonnement synchrotron polarisé et dans le cas d'une *équipartition* entre chaque électron du double continuum de l'excès d'énergie apportée par un photon de la source. Elle est également appliquée avec succès pour une répartition inégale [169] lorsque l'éjection se fait dans le plan perpendiculaire au faisceau de photons [190]. Dans ce cas, le développement d'une amplitude de transition se fait par l'utilisation des fonctions d'onde de Hylleraas pour représenter l'état fondamental corrélé en jauge des vitesses. Cependant, des différences apparaissent par rapport aux données expérimentales de P. Lablanquie *et al.* [191] lors de l'éjection *hors équipartition* de l'excès d'énergie, près du seuil de double ionisation et pour une géométrie coplanaire [174]. Ces différences sont affirmées avec les résultats de R. Dörner *et al.* [192] puis ceux de H. Bräuning *et al.* [212, 193] où le choix de jauge s'avère déterminant pour reproduire convenablement le comportement angulaire de l'éjection.

Nous allons donc appliquer cette méthode à nos calculs CV2 afin d'évaluer si elle est plus adaptée qu'un système de charges écrantées. Nous avons choisi d'utiliser ce processus car il nous semble assez intuitif de décrire directement la répulsion entre les électrons par une onde Coulombienne. Pour des raisons de simplicité et en suivant la démarche de [168], la majeure partie des effets liés à l'interaction {électron-électron} est représentée par le facteur de normalisation

$$N_C = \left| \exp \left(-\frac{\pi \alpha_3}{2} \right) \Gamma(1 - i\alpha_3) \right|^2 \quad (5.11)$$

Il s'agit finalement d'une pondération de l'amplitude de transition dépendante directement des vecteurs d'onde de chaque électron dans le continuum. Nous allons également utiliser le même changement de variable sur les angles azimutaux que pour l'étude avec 2SC, afin de réduire le nombre d'intégrations. Il est à noter que les charges nucléaires des états finaux sont fixées à 2.

5.4.1 Double ionisation à un photon

Distribution angulaire

Nous assistons à un net redressement des distributions angulaires et à l'apparitions de structures en lobes prononcées (cf. FIG. 5.8), de la même manière que [168]. Hormis les cas à $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0,45 \text{ u.a.}$ (rouge) et $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0 \text{ u.a.}$ (noir) où le second électron est émis préférentiellement dans la direction de polarisation, toutes les autres situations de répartition de l'énergie présentent deux lobes orientés de chaque côté de l'axe défini par la direction d'éjection du premier électron. La proportion relative de chacun d'eux évolue d'une situation symétrique pour $\theta_k = 0^\circ$ (cf. FIG. 5.8 a)) vers une situation très disymétrique pour $0^\circ < \theta_k < 90^\circ$ (cf. FIG. 5.8 b)) pour à nouveau revenir à une configuration symétrique quand $\theta_k = 90^\circ$ (cf. FIG. 5.8 c)).

Distribution en énergie

D'emblée, une nette dominance des cas $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0,45 \text{ u.a.}$ (rouge) et $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0 \text{ u.a.}$ (noir) se dégage, et ce tant que $\theta_{k'} < 90^\circ$ (cf. FIG. 5.9 a) et b)). Il est tout à fait intéressant de noter que les distributions à et proches de l'équipartition sont soit inexistantes pour $\theta_{k'} = 0^\circ$ soit très défavorisés lorsque l'on augmente $\theta_{k'}$ (cf. FIG. 5.9 a) et b)). Puis, pour $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 5.9 c)) nous voyons apparaître cette homogénéité dans la distribution en énergie que nous avons déjà observée pour le cas non-corrélé. Cependant, plus $\theta_{k'}$ augmente, plus la répartition dominante se déplace vers les extrémités du spectre en énergie pour reformer une structure creusée à $\theta_{k'} = 180^\circ$ (cf. FIG. 5.9 d)). En définitive, les processus non-physiques sont interdits pour $\theta_{k'} < 90^\circ$ et l'on retrouve ensuite certaines caractéristiques des profils non corrélés mais accentuées.

Section efficace

La mise en place du système 3C modifie fortement le profil de la section efficace (cf. FIG. 5.10). Les calculs CV2 avec ce type de corrélations sous-estiment largement les autres résultats, entre un et trois ordres de grandeur quand on passe des hautes vers les basses énergies de photon. Il semble aussi que la section efficace tende vers une asymptote horizontale alors que les autres calculs décroissent régulièrement. Cet aspect se comprend par le fait de ne conserver que le facteur N_C (« facteur de Maulbetsch ») dans les calculs modifie drastiquement la normalisation des fonctions d'onde. En effet, la partie hypergéométrique de la fonction Coulombienne n'entre plus en compte

et de fait, il n'est pas surprenant que les sections efficaces calculées par ce modèle soient largement sous-estimées.

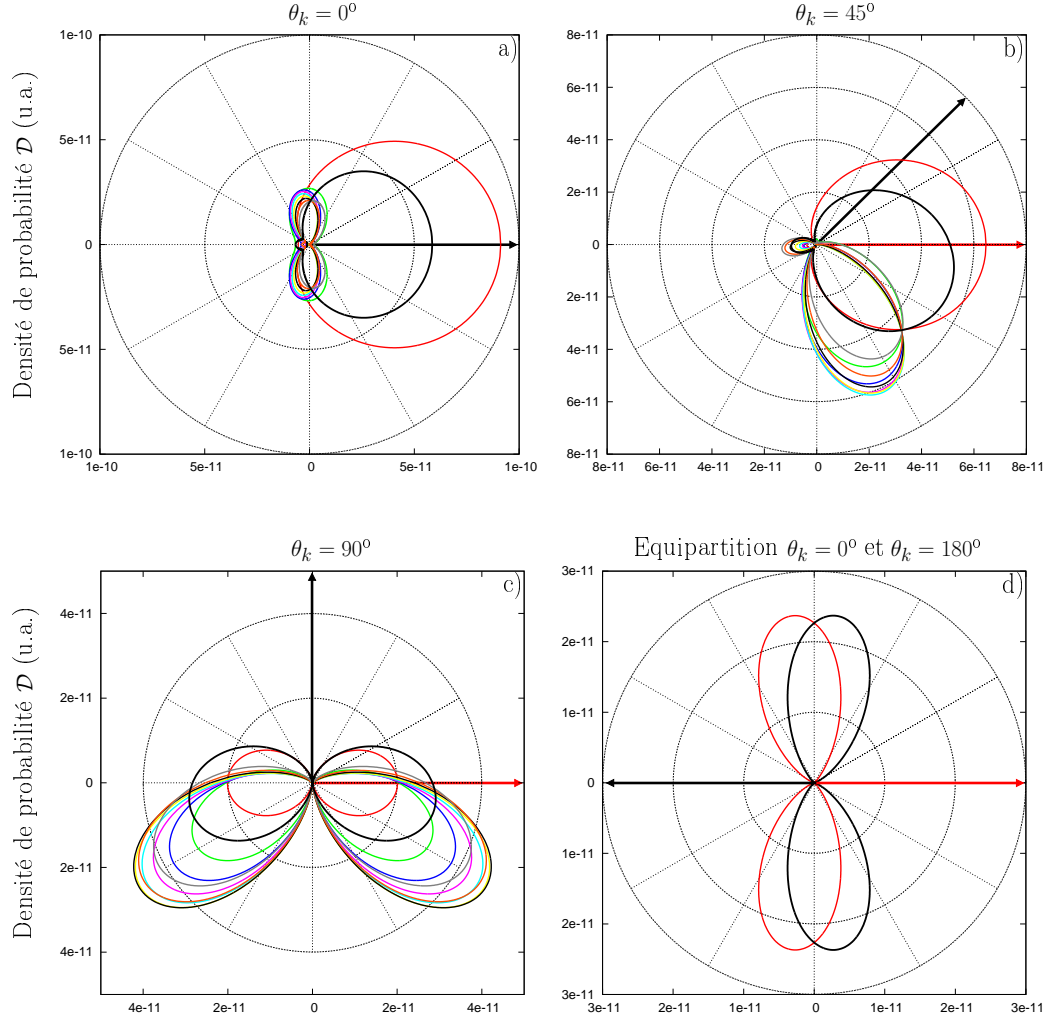


FIG. 5.8 – Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

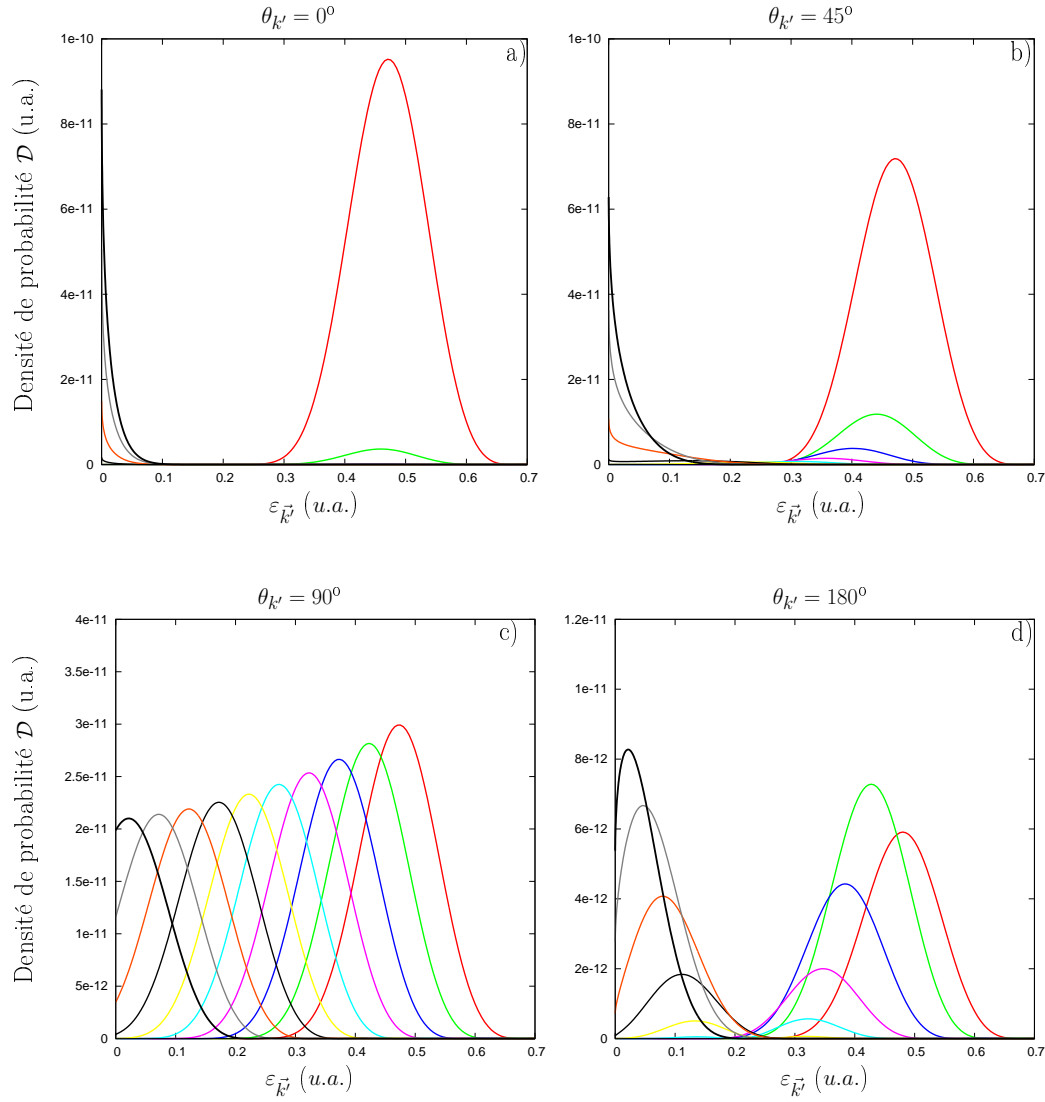


FIG. 5.9 – Distribution CV2 en énergie de la DPl ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 u.a.$, $E_0 = 10^{-3} u.a.$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

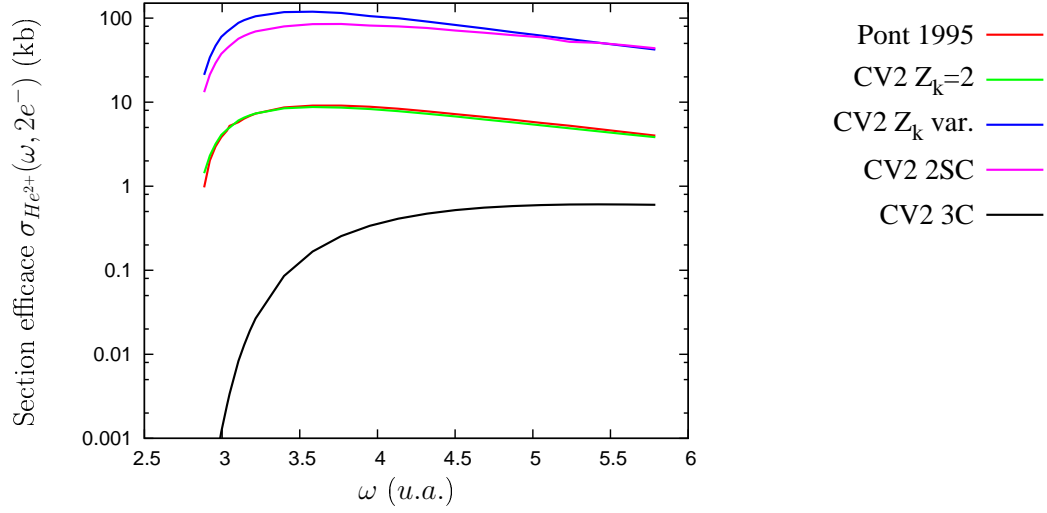


FIG. 5.10 – Section efficace totale de DPI ω calculée par CV2 avec corrélations 3C dans l'état final.

5.4.2 Double ionisation à deux photons

Distribution angulaire

Dès que l'on inclut les corrélations angulaires, nous observons que le deuxième électron est majoritairement éjecté à l'opposé du premier tout en éliminant la contribution pour $\theta_{k'} = 0^\circ$ présente dans le cas non corrélé (cf. FIG. 5.11). Le fait changer l'angle d'éjection du premier n'affecte que peu l'orientation du second qui reste toujours préférentiellement dirigée autour de 180° (cf. FIG. 5.11 b)). Cependant, nous pouvons voir qu'entre $\theta_k = 45^\circ$ et $\theta_k = 90^\circ$ le changement d'orientation est très rapide (cf. FIG. 5.11 c)). Sous cette forme, ces résultats concordent avec ceux fournis par [201].

Distribution en énergie

Les distributions en énergie présentent deux tendances radicalement opposées (cf. FIG. 5.12). Dans un premier temps, nous retrouvons comme pour la DPI ω , les cas à $\theta_{k'} < 90^\circ$ où les configurations principales sont celles pour lesquelles le second électron emporte la soit quasi-totalité soit aucune partie de l'énergie en excès (cf. FIG. 5.12 a) et b)). Nous pouvons également noter l'importance relative du cas $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0$ u.a. (courbe noire) qui croît jusqu'à son maximum à $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 5.12 c)). Dans un deuxième temps et au-delà

de cette valeur, le profil général devient largement distribué autour de l'équipartition, caractéristique déjà présente pour le cas non-corrélé, mais moins accentuée (cf. FIG. 5.12 d)).

Section efficace

La section efficace à deux photons présente exactement les mêmes tendances qu'à un photon avec un profil tout à fait similaire (cf. FIG. 5.13) c'est-à-dire sous-estime du même ordre de grandeur les résultats publiés. Ainsi, N_C impose un comportement pour la section efficace de toute évidence très en-deçà des calculs déjà référencés. Dès lors, nous ne présenterons plus de sections efficaces totales calculées à partir du modèle 3C.

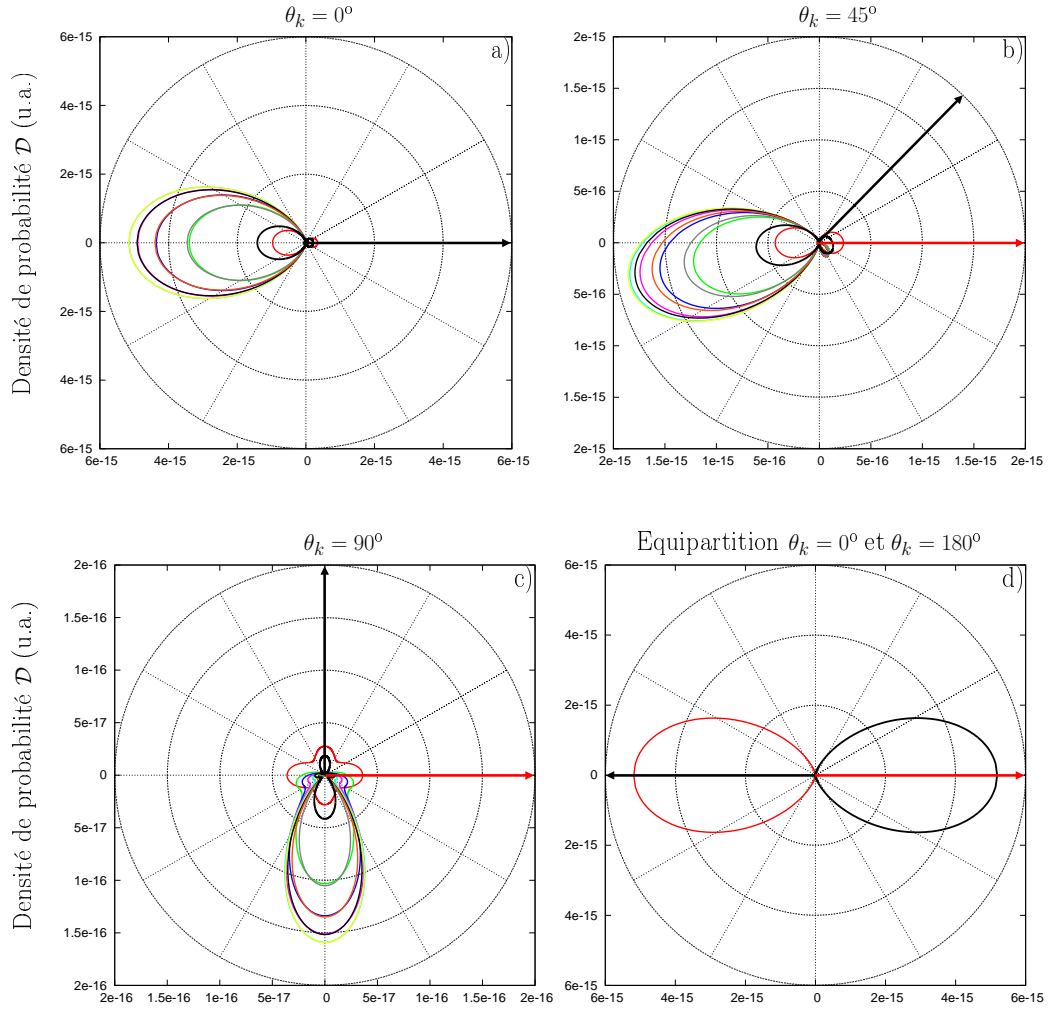


FIG. 5.11 – Distribution CV2 en angle de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

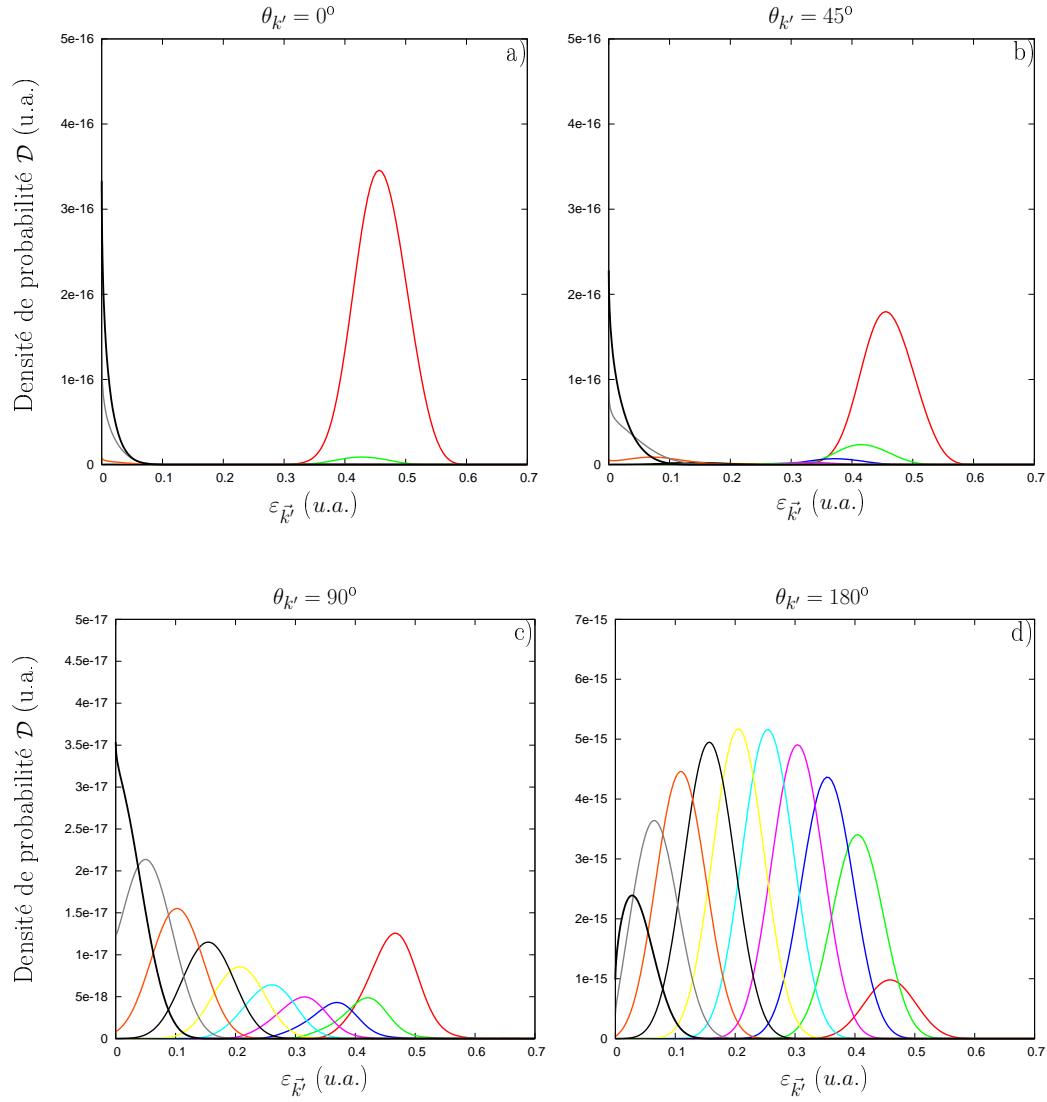


FIG. 5.12 – Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

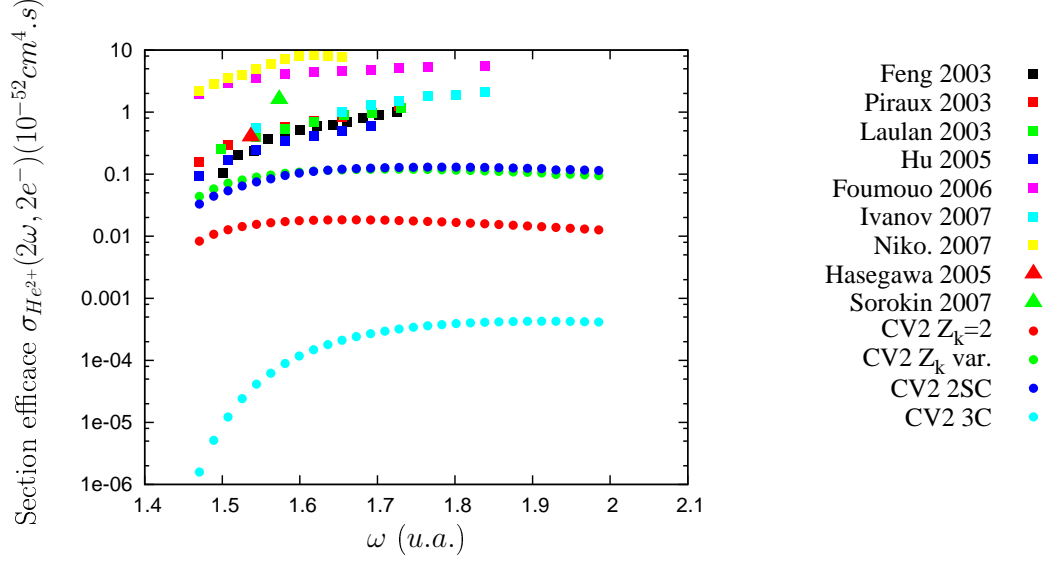


FIG. 5.13 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par CV2 avec corrélations 3C dans l'état final.

5.4.3 Discussion et conclusion

L'exploitation des calculs Coulomb-Volkov de la DPI ω avec corrélations 3C sous certaines conditions, a mis en lumière deux cas où elle ne correspond pas aux observations expérimentales [191, 195]. Premièrement, pour l'équipartition entre chaque électron de l'excès d'énergie apporté par un photon du rayonnement, si l'on augmente ω , les deux lobes symétriques ont tendance à se rabattre vers l'avant comme illustré par les FIG. 5.14 a), b) et c) où respectivement ω vaut 3 puis 4 et 5 $u.a.$ Aucun phénomène de ce type n'est observé expérimentalement même pour des énergies de photon élevées [195]. Deuxièmement, expérimentalement, quand l'énergie en excès n'est pas également répartie entre chaque électron, nous constatons une éjection privilégiée du second électron à $\theta_{k'} = 180^\circ$ quand le premier est éjecté à $\theta_k = 0^\circ$. Plus $\varepsilon_{\vec{k}'}$ est différent de $\varepsilon_{\vec{k}}$, plus cette éjection privilégiée est favorisée. Au contraire, la structure en lobe est de moins en moins marquée au fur et à mesure que l'on se rapproche de $\varepsilon_{\vec{k}} = \varepsilon_{\vec{k}'}$ [195]. Ce phénomène n'est pas reproduit par la description actuelle et l'on peut voir que s'il l'on se place dans les mêmes conditions que les figures 6 a), e) et i) de cet article où l'on a $\omega = 179 \text{ eV}$ (6,58 $u.a.$) et une répartition de l'énergie de $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 \text{ eV}$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 1,5 \text{ eV}$ (resp. 3,621 et 0,055 $u.a.$), $\varepsilon_{\vec{k}} = 50 \text{ eV}$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 50 \text{ eV}$ (1,838 $u.a.$) et $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 \text{ eV}$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 98,5 \text{ eV}$ la déformation des lobes n'existe pas (cf. FIG. 5.14 d), e), f)). Seuls les deux

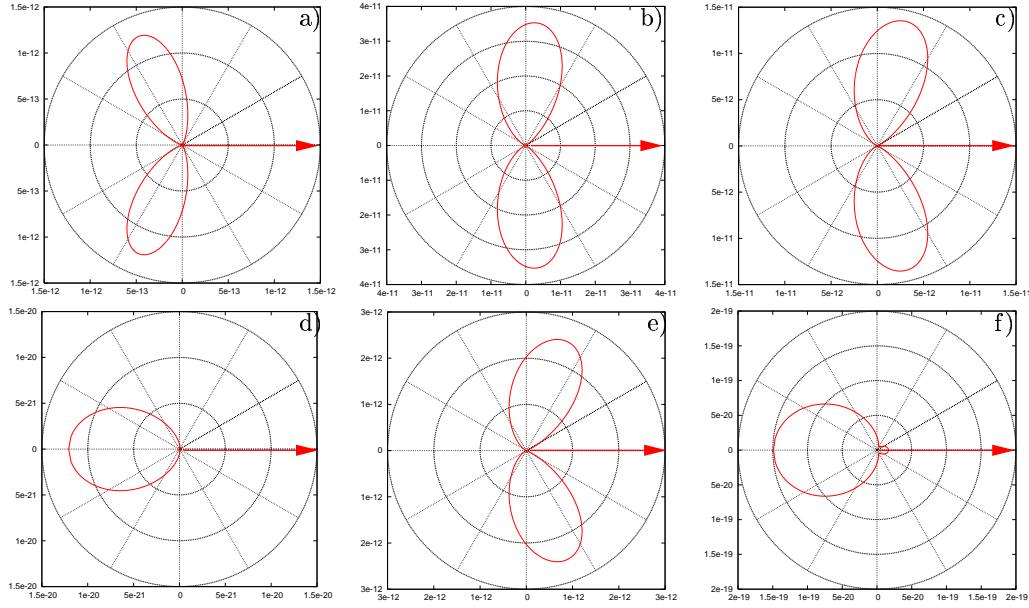


FIG. 5.14 – Distribution angulaire de la $DPI\omega$ calculée par CV2 avec 3C et équipartition de l'excès d'énergie : a) $\omega = 3 u.a$; b) $\omega = 4 u.a$; c) $\omega = 5 u.a$ puis dans les mêmes conditions que les figures a), e) et i) de [195] où l'énergie de $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 eV$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 1,5 eV$, $\varepsilon_{\vec{k}} = 50 eV$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 50 eV$ et $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 eV$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 98,5 eV$. Il s'agit pour notre cas des figures d), e) et f) respectivement.

types de profils représentés subsistent dans notre approche et ce, quelle que soit la répartition de l'énergie entre les électrons. Nous voyons à présent la nécessité de raffiner la description Coulomb-Volkov actuelle car bien que les corrélations angulaires soient prises en compte, elle ne décrit convenablement que les cas à l'équipartition de l'excès d'énergie, ce qui reste très insuffisant. A présent, l'idée est de s'orienter vers une description de l'état fondamental autre qu'un simple produit d'orbitales hydrogénoïdes, permettant d'extrapoler le calcul hors équipartition.

Nous avons vu dans ce chapitre qu'une description simple de l'état fondamental avec $Z_i = 1,6875$ et du double continuum avec $Z_k = Z_{k'} = 2$ conduit à une évaluation correcte de la section efficace totale de la $DPI\omega$. Dans tous les autres cas ; distributions angulaires, distributions en énergie et $DPI2\omega$, les corrélations électroniques jouent manifestement un rôle important. L'introduction d'un facteur représentant la répulsion électronique dans l'état final semble le meilleur moyen d'améliorer la description des distributions angulaires et en énergie à un et deux photons. Les prochaines étapes consistent à évaluer l'influence des corrélations dans l'état initial et des états intermé-

diaires, négligés dans l'approche CV2. Le premier point constitue la trame du chapitre suivant.

Chapitre 6

Le rôle des corrélations électroniques dans l'état initial

6.1 Introduction

LA deuxième amélioration sur laquelle nous avons travaillé est le raffinement de l'état fondamental. Au chapitre précédent, il nous est apparu nécessaire de prendre en compte de manière plus précise les corrélations dans l'état fondamental. L'objectif est de décrire les cas relatifs à la non-équipartition de l'énergie en excès. Pour cela, nous avons remplacé la description initiale, produit d'orbitales hydrogénoïdes $1s$ (dénommé $(1s)^2$), par un état fondamental exposé dans l'article de J.N. Silverman, O. Platas et F.A. Matsen [157], décrit comme une configuration en « couche ouverte ». Il s'agit de rajouter explicitement la contribution d'orbitales $2p_0$, $2p_+$ et $2p_-$ dont l'un des avantages est sa bonne précision en regard de sa relativement faible complexité. Les auteurs suggèrent d'ailleurs que l'essentiel des contributions angulaires provient des orbitales $2p$ qu'il va être donc être possible d'évaluer directement dans nos calculs. Ceci est un élément important pour la compréhension générale de la dynamique de double ionisation.

6.2 Le formalisme

Tout comme le cas $(1s)^2$, nous allons redévelopper l'amplitude de transition en utilisant cette nouvelle expression de l'état initial, l'état final restant quant à lui inchangé. Les calculs exposés ici sont résumés et les détails du développement sont regroupés dans les annexes auxquelles on fera référence tout au long du développement.

6.2.1 Fonction d'onde initiale

La fonction d'onde que nous allons utiliser pour décrire l'état fondamental est [157]

$$\begin{aligned} \Phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \simeq & \frac{1}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left\{ \mathcal{N} \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right] \right. \\ & + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \right. \\ & \left. \left. + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \right\} \exp(-i\varepsilon_{He}t) \end{aligned} \quad (6.1)$$

où $\varepsilon_{He} = -2,8952278 \text{ u.a.}$ et le paramètre $\lambda = -0,0617557$. Chaque orbitale s où p est représentée par une fonction d'onde, produit d'une partie radiale exposée dans [157] et de l'harmonique sphérique correspondante. Elles prennent alors la forme suivante

$$\begin{cases} \varphi_{1s}(\vec{r}) = \pi^{-\frac{1}{2}} a^{\frac{3}{2}} \exp(-ar) & a = 2,17621 \\ \varphi_{1s'}(\vec{r}) = \pi^{-\frac{1}{2}} b^{\frac{3}{2}} \exp(-br) & b = 1,20152 \\ \varphi_{2p_0}(\vec{r}) = \pi^{-\frac{1}{2}} g^{\frac{5}{2}} r \exp(-gr) \cos \theta & g = 2,47547 \\ \varphi_{2p_{\pm}}(\vec{r}) = \mp (2\pi)^{-\frac{1}{2}} g^{\frac{5}{2}} r \exp(-gr) \sin \theta \exp(\pm i\phi) \end{cases} \quad (6.2)$$

Insistons sur la différence entre les facteurs de normalisation \mathcal{N} et N , représentant respectivement la normalisation de la fonction d'onde initiale et celle du double continuum (cf. annexe B).

6.2.2 Amplitude de transition

En suivant exactement la même démarche que pour l'amplitude $T_{(1s)^2}$, débutons par la forme prior

$$T_{fi}^- \simeq -i \int_0^\tau dt \langle \chi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (6.3)$$

Puis, par projection dans l'espace des configurations avec les définitions (2.48) et (6.1), et en labélisant l'amplitude par S il vient

$$\begin{aligned}
T_S^- &\simeq -i \int_0^\tau dt \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 N^* \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] \\
&\times \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'}) t \right] \mathcal{L}_{\vec{k}\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \vec{E}(t) \\
&\times \frac{1}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left\{ \mathcal{N} \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right] \right. \\
&+ \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \left. \right\} \\
&\times \exp(-i\varepsilon_{He} t)
\end{aligned} \tag{6.4}$$

Séparons les termes ne dépendant que du temps de ceux dépendant aussi de \vec{r}_1 ou \vec{r}_2 , et utilisons la définition de la phase de Volkov (cf. §2.3.3) (souvenons-nous que N est réel)

$$\begin{aligned}
T_S^- &\simeq -i \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'}) t + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_{+\infty}^t dt' \vec{A}^-(t') - i\varepsilon_{He} t \right] \\
&\times \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 N \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] \\
&\times \frac{r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left\{ \mathcal{N} \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right] \right. \\
&+ \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \left. \right\}
\end{aligned} \tag{6.5}$$

Le calcul détaillé de T_S^- est décrit dans l'annexe G, et en vertu de ces résultats nous pouvons réécrire l'équation précédente sous la forme simplifiée

$$\begin{aligned}
T_S^- &\simeq -iN(1 + \lambda^2)^{-1/2} \exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right] \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') \\
&\times \int_0^\tau dt E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He}) t + i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_{+\infty}^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \\
&\times \left[\mathcal{C}_1 \mathcal{T}_1 + \mathcal{C}_2 \mathcal{T}_2 + \mathcal{C}_3 \mathcal{T}_3 \right]
\end{aligned} \tag{6.6}$$

où chaque terme \mathcal{T} intervenant dans le facteur entre crochets concerne respectivement la contribution des orbitales $1s1s'$, $(2p_0)^2$ et $2p_{\pm}$. Les coefficients \mathcal{C} s'écrivent quant à eux

$$\begin{cases} \mathcal{C}_1 = \frac{32}{\pi^2} \mathcal{N}(ab)^{3/2} \\ \mathcal{C}_2 = -\frac{64\lambda}{\sqrt{3}\pi^2} g^5 \\ \mathcal{C}_2 = -\frac{2^7 \lambda}{\sqrt{3}\pi^2} g^5 \end{cases} \quad (6.7)$$

Nous allons exploiter le calcul ci-dessus pour chacun des cas à un puis à deux photons comme nous l'avons fait auparavant. Tout d'abord, regardons le cas sans corrélations, dans un second temps nous les incluerons en utilisant le modèle 3C afin de mettre en lumière séparément l'influence de chaque amélioration.

6.3 Double ionisation sans corrélations dans l'état final

Nous présentons les calculs pour les mêmes conditions de champ que précédemment c'est-à-dire pour $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, une énergie de photon $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$ pour les transitions à un photon et $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ à deux photons et un nombre de cycles optiques égal à $N_{cycles} = 30$.

6.3.1 Double ionisation à un photon

Distribution angulaire

L'amélioration de la description de l'état fondamental a un rôle majeur pour la distribution angulaire (cf. FIG. 6.1). Une structure en lobe apparaît qui atténue systématiquement l'éjection du second électron à l'opposé du premier, pour la majorité des répartitions en énergie (cf. FIG. 6.1 a)). Bien que la dépendance angulaire ne soit plus strictement fonction de θ_k (du fait des orbitales p), l'absence de corrélations dans l'état final se remarque car l'éjection du second électron se fait toutefois dans un cône globalement orienté suivant la direction d'éjection du premier électron (cf. FIG. 6.1 b)), hormis le cas $\theta_k = 90^\circ$ où l'on retrouve une symétrie des lobes par rapport à la direction d'éjection du premier électron (cf. FIG. 6.1 c)). L'évolution relative de chaque lobe est très dépendante de l'angle d'éjection du premier électron et nous passons successivement d'un profil symétrique par rapport à l'axe

d'éjection du premier électron pour $\theta_k = 0^\circ$ (cf. FIG. 6.1 a)), à un profil très asymétrique quand $0^\circ < \theta_k < 90^\circ$ (cf. FIG. 6.1 b)) puis à nouveau un profil symétrique pour $\theta_k = 90^\circ$. Nous vérifions toujours pour l'équipartition, l'absence d'émission à l'opposé de l'éjection du premier électron (cf. FIG. 6.1 d)).

Distribution en énergie

Nous constatons d'emblée une nette prépondérance pour les cas extrêmes¹¹ même lors de l'éjection de chaque électron dans la même direction (cf. FIG. 6.2 a)). Puis cette structure creusée tend à s'effacer au fur et à mesure de l'augmentation de $\theta_{k'}$ (cf. FIG. 6.2 b)) jusqu'à une distribution très homogène pour $\theta_{k'} = 90^\circ$ mais répartie autour de $\varepsilon_{\vec{k}} = \varepsilon_{\vec{k}'}$ (cf. FIG. 6.2 c)). Enfin, pour $\theta_{k'} > 90^\circ$ le comportement tend à effacer à nouveau les configurations centrales et revenir à la situation initiale où à nouveau les cas extrêmes sont largement majoritaires (cf. FIG. 6.2 d)).

Section efficace

Nous observons très bien l'influence grandissante des orbitales $2p$ sur la section efficace quand l'énergie du photon augmente (cf. FIG. 6.3). Nous avons vérifié par ailleurs que le calcul de la section efficace totale en supprimant les orbitales $2p$ et en posant les charges nucléaires des orbitales $1s$ et $1s'$ égales à 1,6875 permet de retrouver exactement les résultats $(1s)^2$. La coïncidence des calculs près du seuil de double ionisation nous indique que dans cette région, la contribution essentielle est celle des orbitales $1s$. De plus, si nous omettons les orbitales $2p$ dans le calcul, l'augmentation que nous constatons est légèrement plus faible. Nous pouvons comprendre cette différence car l'essentiel de la contribution supplémentaire provient des orbitales $1s1s'$ du nouvel état fondamental. Les charges tabulées pour chacune d'elles sont respectivement $a = 2,17621$ et $b = 1,2015$. Le recouvrement des fonctions d'onde est alors différent du cas $Z_i = 1,6875$, et mène à cet écart vers les plus hautes énergies de photon. Il est donc clair que le choix optimum des charges $Z_k = Z_{k'} = 2$ pour le double continuum est propre à la représentation $(1s^2)$ l'état fondamental pour lequel on a $Z_i = 1,6875$.

¹¹Nous entendons par cas extrêmes les cas où un des électrons emporte la quasi-totalité de l'énergie laissant l'autre avec une énergie proche de 0. Il s'agit des cas qui tendent vers les extrémités de la répartition en énergie.

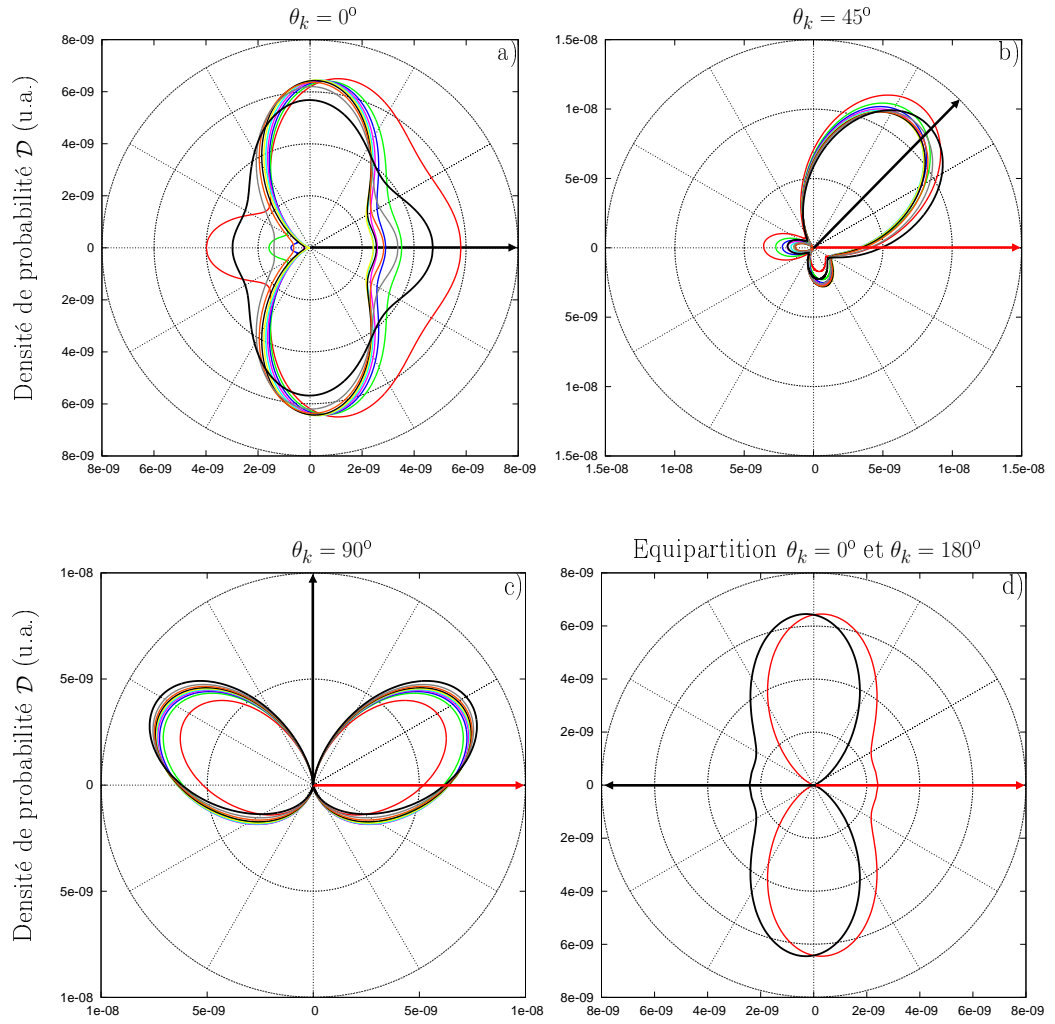


FIG. 6.1 – Distribution CV2 en angle de la DPl ω avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

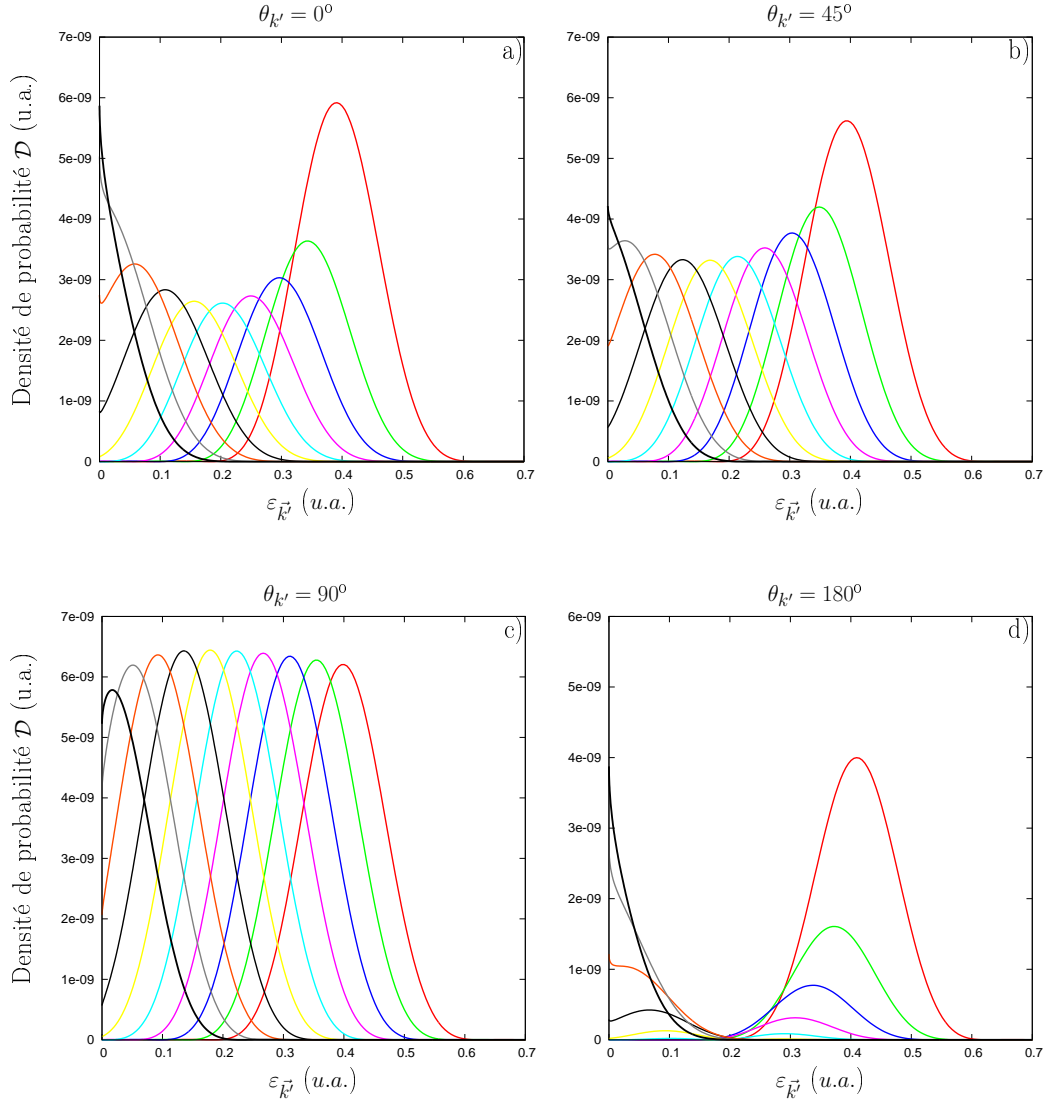


FIG. 6.2 – Distribution CV2 en énergie de la DPI ω avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

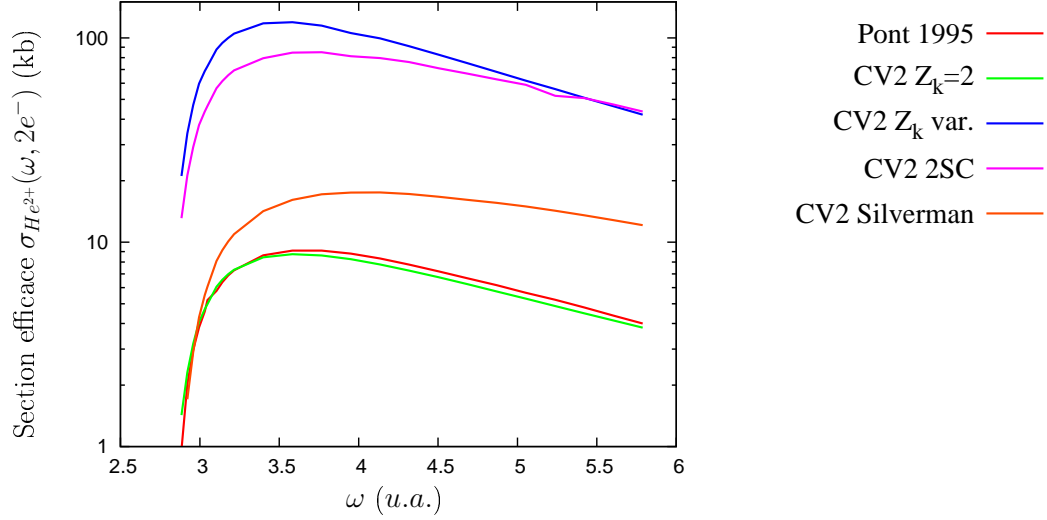


FIG. 6.3 – Section efficace totale de $\text{DPI}\omega$ calculée par CV2 avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final.

6.3.2 Double ionisation à deux photons

Distribution angulaire

Nous constatons que l'utilisation du nouvel état fondamental modifie complètement la structure en lobes à l'opposé du cas $(1s)^2$ (cf. FIG. 6.4). L'essentiel de l'éjection du deuxième électron se fait dans la direction du premier lorsque celui-ci est émis à $\theta_k = 0^\circ$ (cf. FIG. 6.4 a)). Nous retrouvons à nouveau un cas non-physique. Lorsque θ_k augmente, la structure relative de chaque lobe est fortement modifiée (cf. FIG. 6.4 b)) et l'on assiste à l'apparition de structures secondaires de chaque côté de l'éjection principale (cf. FIG. 6.4 c)).

Distribution en énergie

Nous retrouvons un comportement tout à fait similaire au cas $(1s)^2$ (cf. FIG. 6.5). En effet, l'homogénéité présente dans le cas $\theta_{k'} = 0^\circ$ (cf. FIG. 6.5 a)) se transforme au fur et à mesure que $\theta_{k'}$ augmente en un profil asymétrique (cf. FIG. 6.5 b) et c)). Puis, au-delà de $\theta_{k'} = 90^\circ$, à nouveau une distribution très homogène se dégage (cf. FIG. 6.5 d)). Il faut toutefois souligner que si ces profils présentent des similitudes par rapport à $(1s)^2$, l'importance relative des cas à $\theta_{k'} = 0^\circ$ et $\theta_{k'} = 180^\circ$ est inversée, en accord avec les profils angulaires respectifs.

Section efficace

De la même manière qu'à un photon, nous constatons l'influence de ce nouvel état fondamental par un écart de plus en plus marqué lorsque l'on se rapproche du seuil de double ionisation (cf. FIG. 6.6).

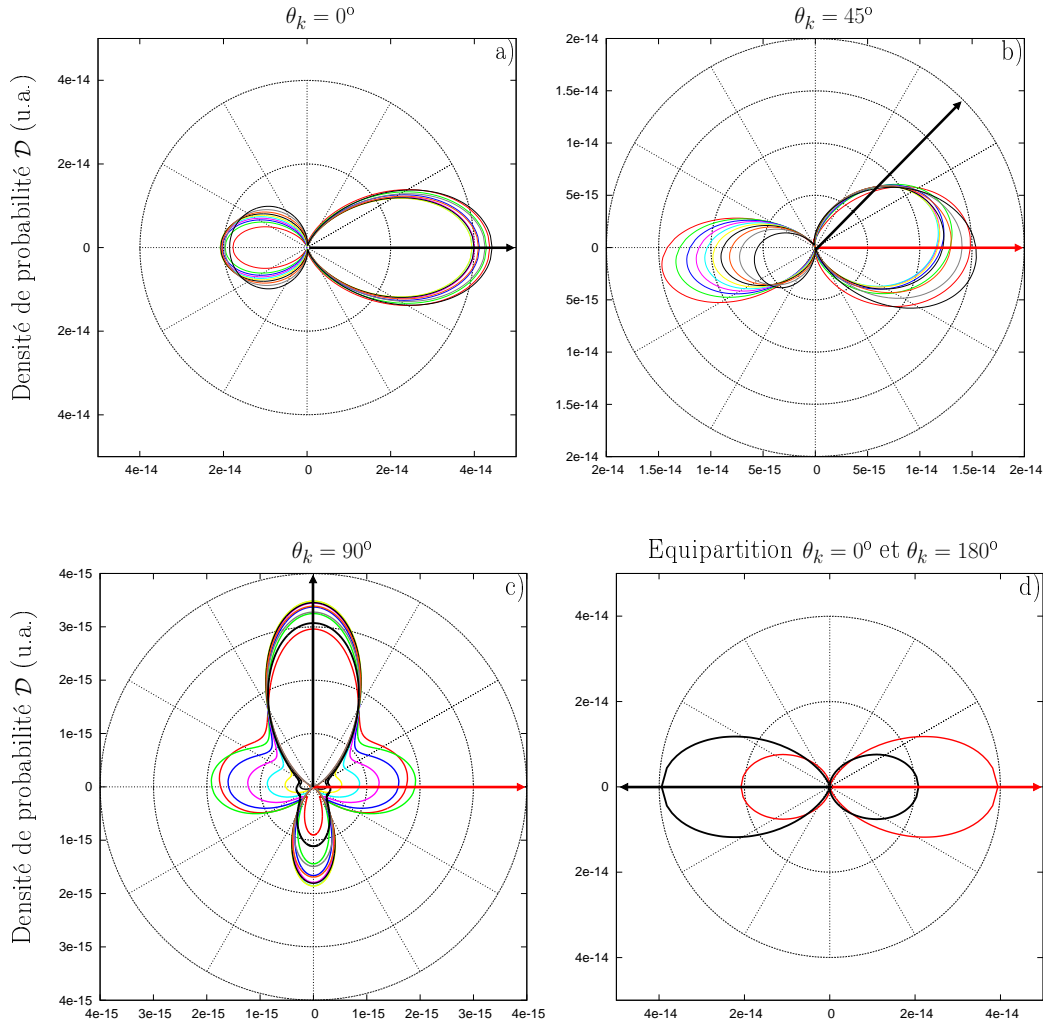


FIG. 6.4 – Distribution CV2 en angle de la DPI2 ω avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

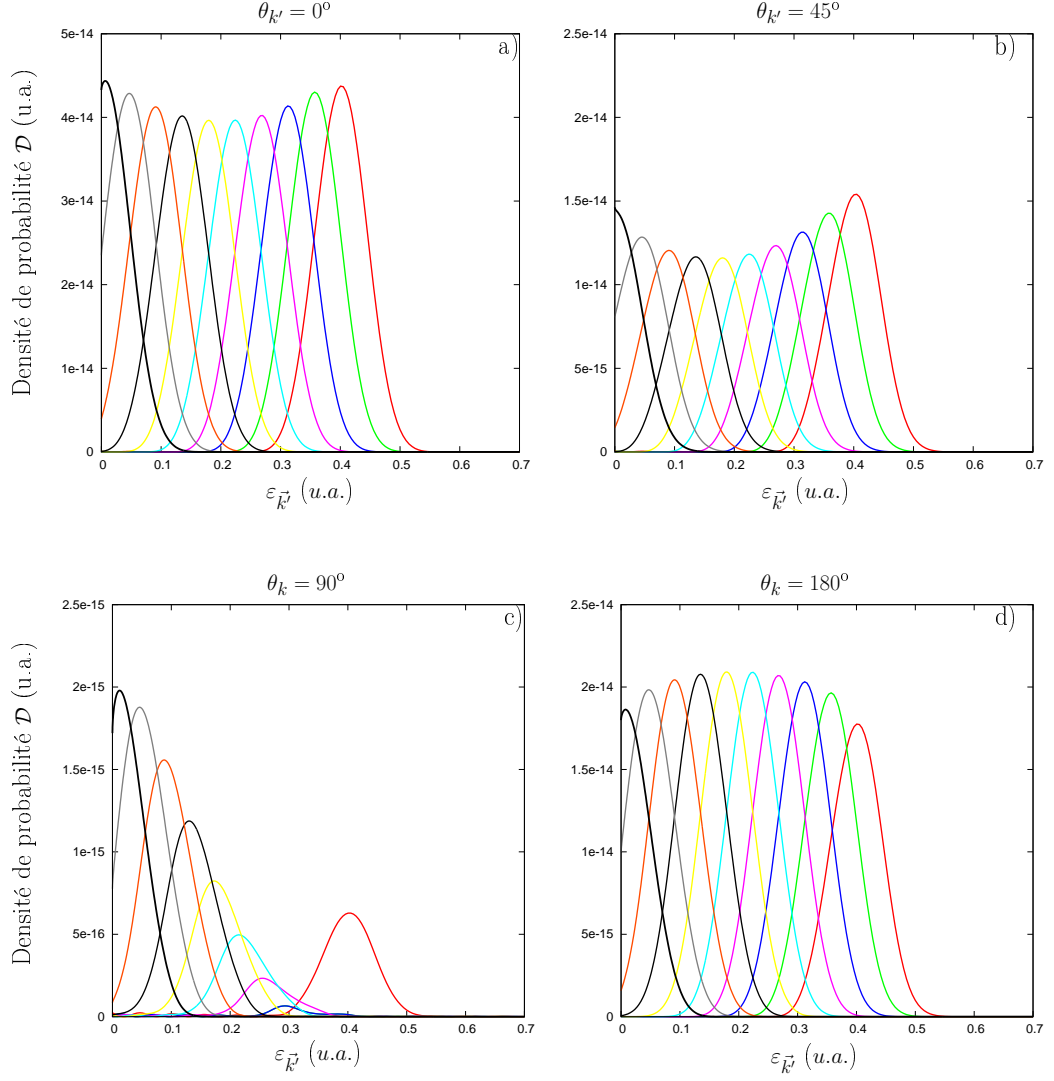


FIG. 6.5 – Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

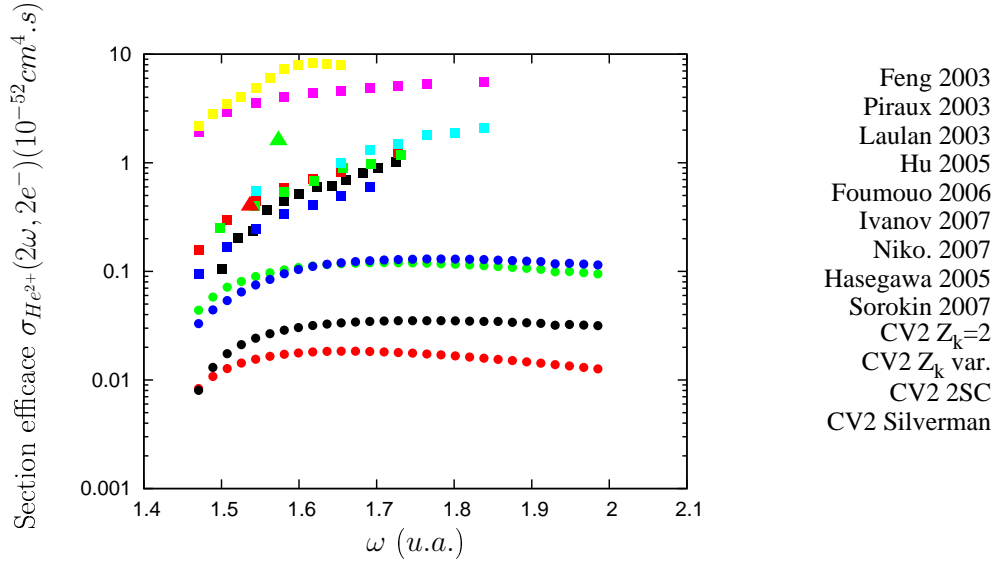


FIG. 6.6 – Section efficace totale de DPI2ω calculée par CV2 avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final.

6.4 Double ionisation avec corrélations 3C dans l'état final

Il s'agit à présent de combiner la nouvelle description de l'état fondamental avec le système de corrélations 3C dans l'état final(cf. §5.4).

6.4.1 Double ionisation à un photon

Distribution angulaire

La prise en compte des corrélations dans l'état final a encore une fois un impact très fort sur les distributions en angle (cf. FIG. 6.7), et se retrouvent globalement distribuées en deux lobes situés de part et d'autre de l'axe d'éjection du premier électron (cf. FIG. 6.7 a)). Sur cette même figure, on constate aussi la possibilité d'éjecter à l'opposé du premier électron par l'apparition d'un lobe à $\theta_{k'} = 180^\circ$ quand l'énergie est répartie différemment de $\varepsilon_{\vec{k}} = \varepsilon_{\vec{k}'}$. De plus, l'amplitude relative de chaque lobe est bien plus proportionnée que dans le cas avec les corrélations 3C seulement, et son évolution en fonction de θ_k est comparable aux résultats présentés dans [192] (cf. FIG. 6.7

b) c) d) et e)). Pour chacune de ces configurations, nous constatons l'existence d'un nœud pour l'émission à l'opposé de l'éjection du premier électron. Il s'avère donc que l'utilisation d'un état fondamental prenant en compte un plus grand nombre d'orbitales, couplé à un système de corrélations du type 3C dans l'état final est déterminante pour une description réaliste des profils angulaires à un photon. L'état fondamental nous permet de décrire des situations d'éjection hors équipartition et les corrélations dans l'état final introduisent directement la répulsion {électron-électron} dans le double continuum atomique.

Distribution en énergie

Comme nous l'avons déjà constaté, les distributions en énergie sont fortement modifiées par l'implémentation des corrélations dans l'état final. Nous retrouvons encore une fois l'accentuation par les corrélations 3C des caractéristiques déjà présentes avec l'état fondamental amélioré seul : une dominance des cas extrêmes pour $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0 \text{ u.a}$ ou $\varepsilon_{\vec{k}'} = 0,45 \text{ u.a}$ quand $\theta_k < 90^\circ$ (cf. FIG. 6.8 a) et b)). Puis, un changement radical pour $\theta_k = 90^\circ$ où encore une fois, une homogénéité se dégage (cf. FIG. 6.8 c)) et se brise (cf. FIG. 6.8 d)) pour à nouveau laisser place à une configuration extrême (cf. FIG. 6.8 e) et f)).

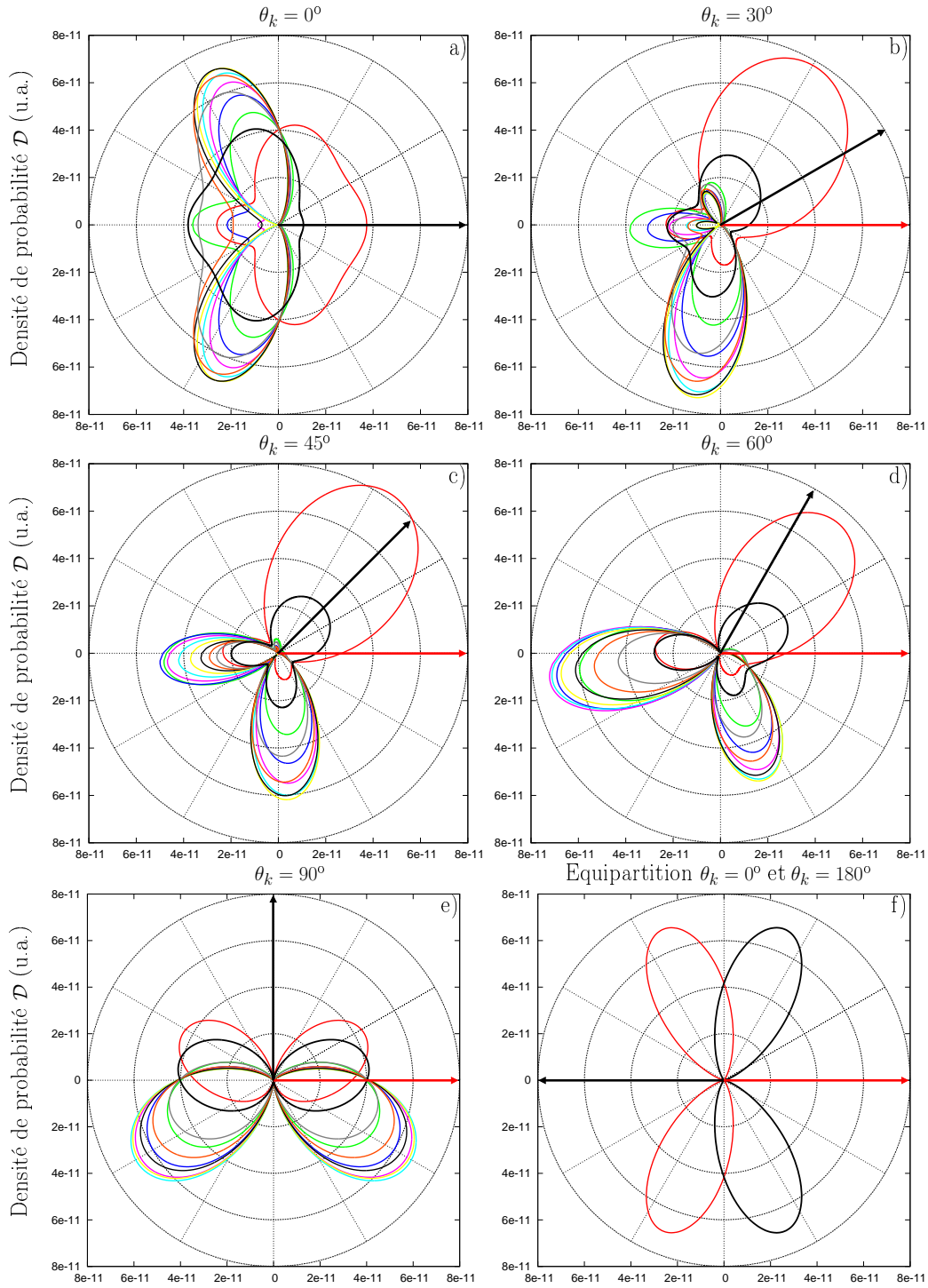


FIG. 6.7 – Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

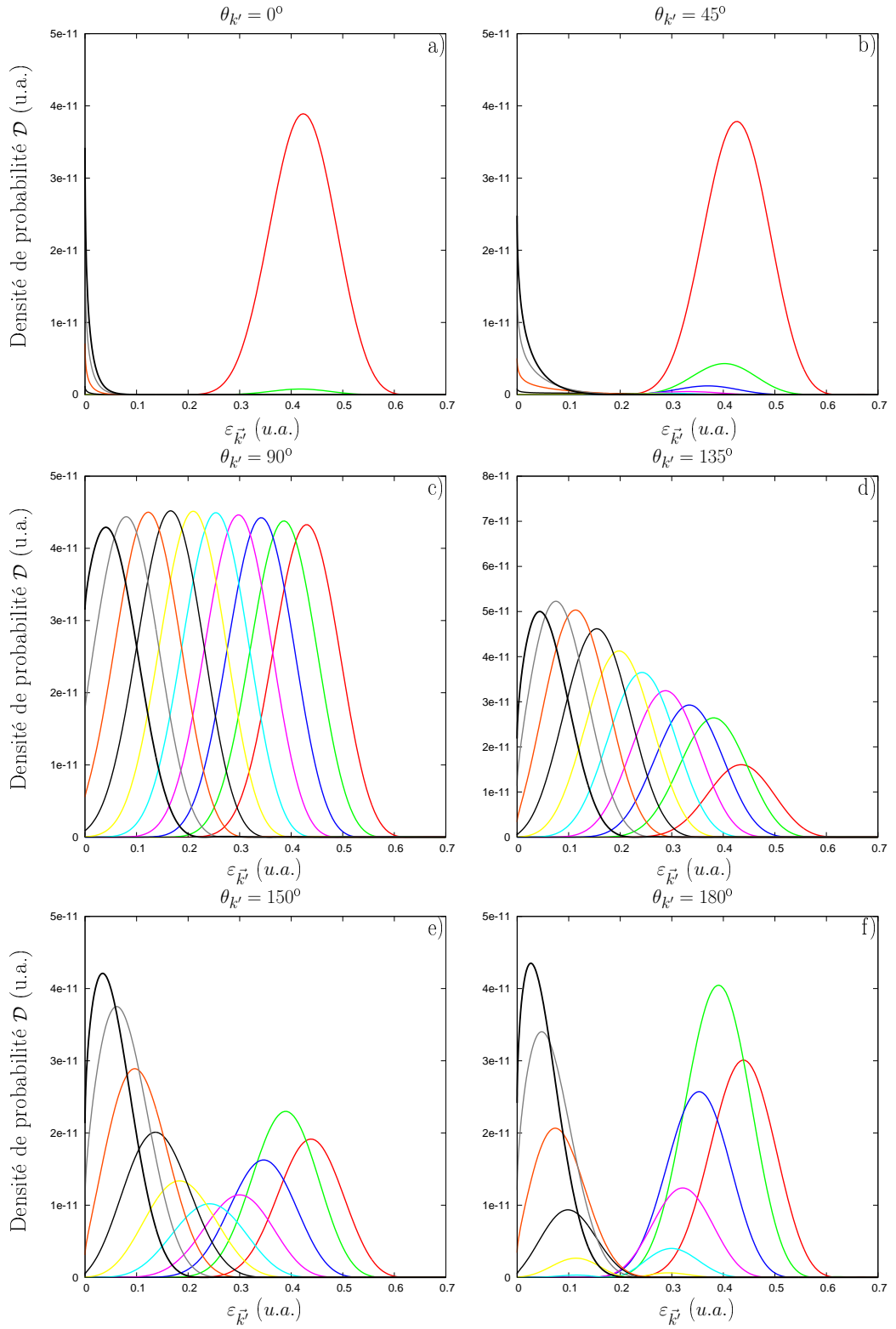


FIG. 6.8 – Distribution CV2 en énergie de la DPI ω avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 u.a.$, $E_0 = 10^{-3} u.a.$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

6.4.2 Applications de la théorie CV2 à un photon

A ce stade du développement, les résultats nous encouragent à exploiter cette forme de l'amplitude de transition et en particulier à comparer avec les cas expérimentaux et théoriques existants.

Comparaison des profils angulaires avec les résultats expérimentaux

Nous nous sommes fondés sur l'article [195] qui regroupe un grand nombre de configurations angulaires expérimentales. Les caractéristiques du rayonnement synchrotron linéairement polarisé de $\omega = 179 \text{ eV}$ ($6,58 \text{ u.a.}$) incident rentrent bien dans le cadre de notre étude à un photon. Bien que ce ne soit pas une impulsion laser et donc qu'aucun temps d'irradiation ni même une valeur d'intensité ne soit précisé, nous supposons que les mécanismes en jeu sont semblables dans les deux cas. En effet, s'ils peuvent être décrits par la théorie des perturbations car mettant en jeu un grand nombre d'oscillations du champ, les résultats en particulier les sections efficaces, sont indépendants du profil temporel de l'impulsion. Dans notre cas, les caractéristiques sont : $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ et un nombre de cycles optiques $N_{cycles} = 30$, correspondant à une durée d'impulsion d'environ 700 as . Nous avons par ailleurs vérifié que les profils sont identiques quand N_{cycles} augmente. Pour chacun des graphes de la FIG. 6.9, une configuration différente est considérée. Nous voyons que nous pouvons reproduire tout à fait convenablement chacune des figures 6 de [195]. Cependant, nous devons utiliser une répartition différente de l'excès d'énergie de celle décrite dans l'article, dont la valeur pour l'électron émis suivant la direction $\theta_k = 90^\circ$ (flèche rouge) pour chaque cas est la suivante : la FIG.6 a) $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 \text{ eV}$, la FIG.6 b) $\varepsilon_{\vec{k}} = 90 \text{ eV}$, la FIG.6 c) $\varepsilon_{\vec{k}} = 80 \text{ eV}$, la FIG.6 d) $\varepsilon_{\vec{k}} = 70 \text{ eV}$, la FIG.6 e) correspond à l'équipartition $\varepsilon_{\vec{k}} = 50 \text{ eV}$, la FIG.6 f) $\varepsilon_{\vec{k}} = 30 \text{ eV}$, la FIG.6 g) $\varepsilon_{\vec{k}} = 20 \text{ eV}$, la FIG.6 h) $\varepsilon_{\vec{k}} = 10 \text{ eV}$, la FIG.6 i) $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 \text{ eV}$. L'énergie de l'autre électron se déduisant par la relation (4.9). Pour notre cas, la FIG. 6.9 a) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 100 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 b) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 c) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 90 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 d) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 80 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 e) correspond à l'équipartition, la FIG. 6.9 f) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 20 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 g) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 10 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 h) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 \text{ eV}$, la FIG. 6.9 i) correspond à $\varepsilon_{\vec{k}} = 0 \text{ eV}$. Ainsi, nous constatons qu'un décalage systématique intervient lorsque l'on veut reproduire correctement les distributions angulaires expérimentales. Tout se produit comme si le calcul gérait différemment la répartition en énergie. Cet effet n'est pas encore expliqué mais nous pouvons avancer l'hypothèse d'une contribution des orbitales d dans l'état

fondamental. Dans ce même article [195], les calculs théoriques utilisent un état fondamental décrit par un développement de Hylleraas sur 20 termes et reproduisant la quasi-totalité de l'énergie de corrélation. Ainsi, bien que l'énergie de corrélations décrite par les orbitales d représente une très faible partie de l'énergie de corrélation globalement disponible, leur prise en compte pourrait être importante pour les distributions angulaires.

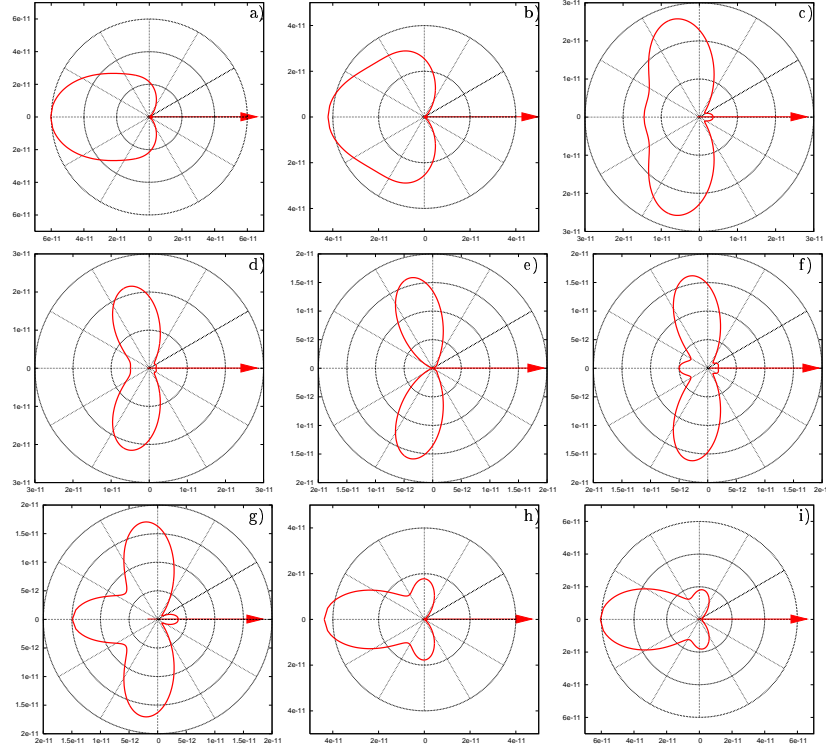


FIG. 6.9 – Distribution CV2 en angles de la DPI ω avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final dans les conditions de l'article (voir texte), $\omega = 179 \text{ eV}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, a) $\varepsilon_{\vec{k}} = 100 \text{ eV}$, b) $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 \text{ eV}$, c) $\varepsilon_{\vec{k}} = 90 \text{ eV}$, d) $\varepsilon_{\vec{k}} = 80 \text{ eV}$, e) équipartition $\varepsilon_{\vec{k}} = 50 \text{ eV}$, f) $\varepsilon_{\vec{k}} = 20 \text{ eV}$, g) $\varepsilon_{\vec{k}} = 10 \text{ eV}$, h) $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 \text{ eV}$, i) $\varepsilon_{\vec{k}} = 0 \text{ eV}$.

Profils angulaires d'éjection 3D

Dans ce paragraphe, il s'agit d'étendre le domaine d'étude à l'ensemble de l'espace. Pour cela, nous avons fait varier l'angle Φ mesurant la différence entre les angles ϕ_k et $\phi_{k'}$ (cf. §5.3 et FIG. 2.1) et ainsi calculé la densité

angulaire correspondante pour chaque pas. Nous reproduisons ainsi une surface représentant l'éjection du second électron dans tout l'espace. Rappelons que la flèche noire symbolise la direction d'éjection du premier électron et la flèche rouge la direction de polarisation du laser. Nous avons représenté trois cas de répartition de l'énergie et deux configurations angulaires pour chacun d'eux : l'équipartition avec $\theta_k = 0^\circ$ et $\theta_k = 45^\circ$ pour les FIG. 6.10 a) et b), $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,35 \text{ u.a.}$ avec $\theta_k = 0^\circ$ et $\theta_k = 45^\circ$ pour les FIG. 6.10 c) et d), $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,05 \text{ u.a.}$ avec $\theta_k = 0^\circ$ et $\theta_k = 45^\circ$ pour les FIG. 6.10 e) et f). Nous voyons clairement que pour les cas hors équipartition et $\theta_k = 0^\circ$ (cf. FIG. 6.10 c) et e)), il existe une possibilité pour l'électron de s'éjecter à $\theta_{k'} = 180^\circ$, contrairement au cas à l'équipartition (cf. FIG. 6.10 a)). Pour les autres cas (cf. FIG. 6.10 b), d) et f)) seule la magnitude relative de chaque lobe change.

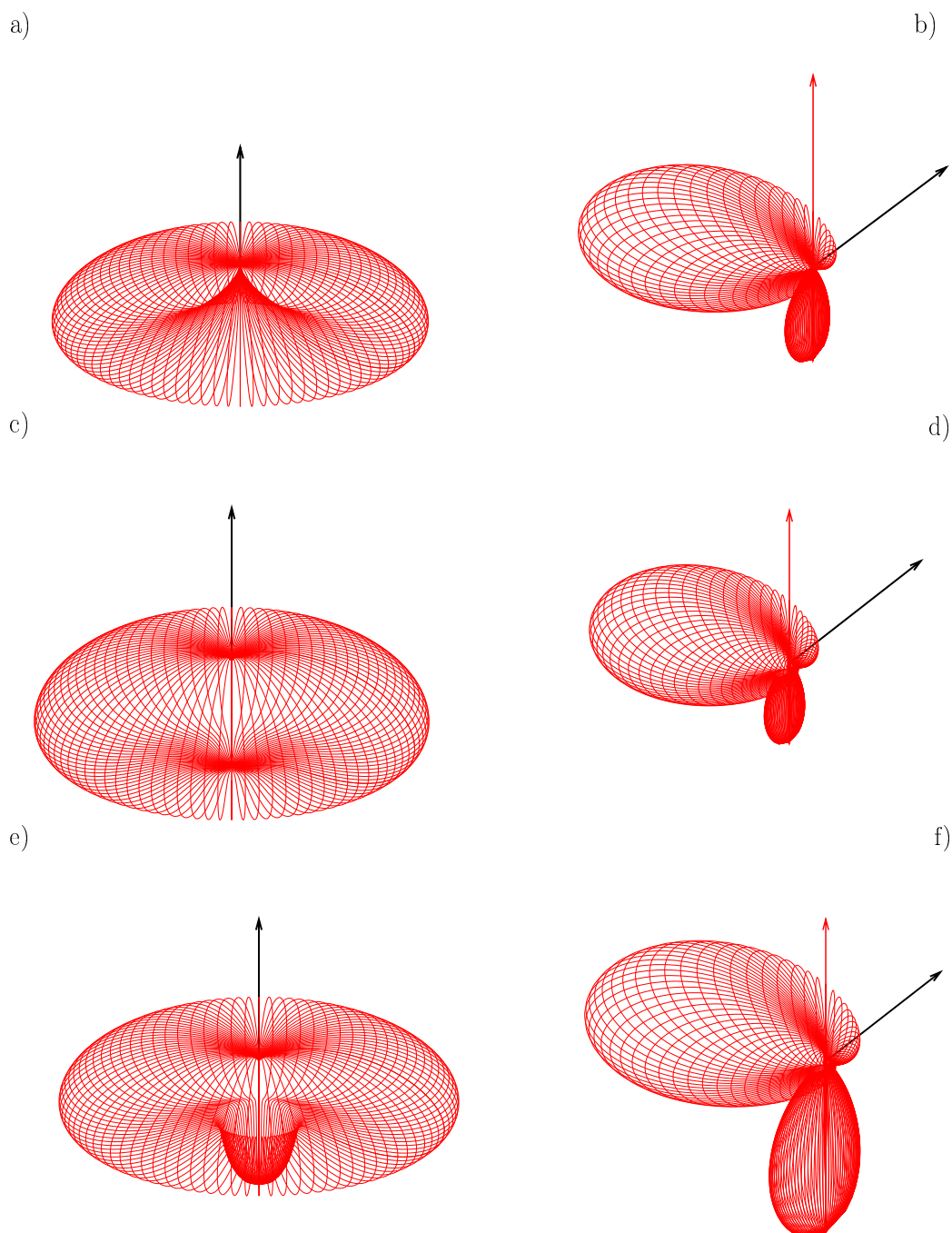


FIG. 6.10 – Profils d'éjections angulaires en trois dimensions avec $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$

Comparaison des profils en énergie intégrés avec les résultats expérimentaux

Un autre point de comparaison avec les résultats expérimentaux, concerne la distribution en énergie des électrons intégrée sur tout l'espace. Nous avons choisi dans notre cas $\omega = 100 \text{ eV}$ ($3,67647 \text{ u.a.}$) et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ (cf. FIG. 6.11). Nous remarquons que, globalement, la distribution intégrée est répartie de manière très homogène le long d'une diagonale représentant la conservation de l'énergie, les axes étant normalisés à l'excès d'énergie. Les cas extrêmes, où l'un ou l'autre des électrons emporte la quasi-totalité partie de l'énergie en excès sont légèrement favorisés. Ces résultats sont en bon accord avec ceux prédits par [166] mais aussi par une méthode TDSE [213] et avec les résultats expérimentaux de [214]. Le fait que ces configurations extrêmes soient favorisées s'explique par les corrélations dans l'état final. Si l'on procède exactement au même calcul, en ne prenant pas en compte l'interaction {électron-électron} sous la forme 3C, nous obtenons la FIG. 6.12. La densité est alors complètement homogène quelle que soit la répartition en énergie.

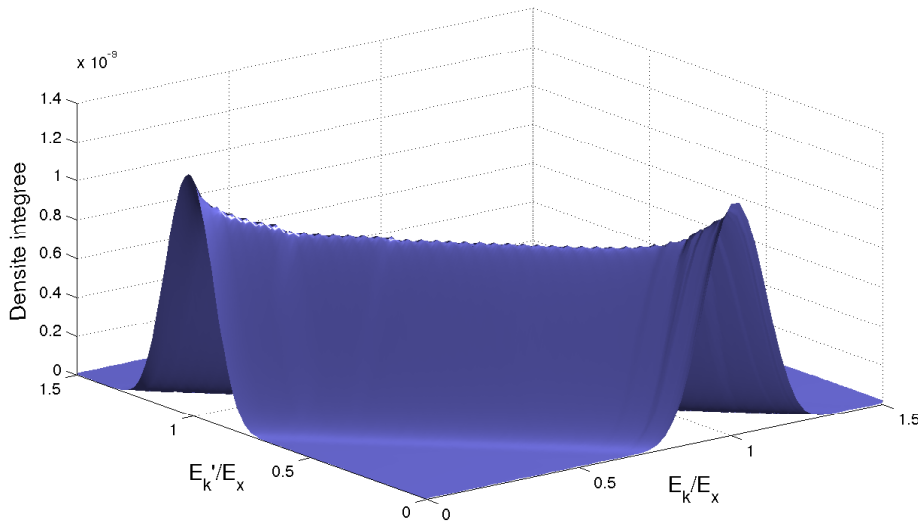


FIG. 6.11 – Distribution CV2 en énergie de la DPI ω , intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré, corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie, $\omega = 3,67647 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$

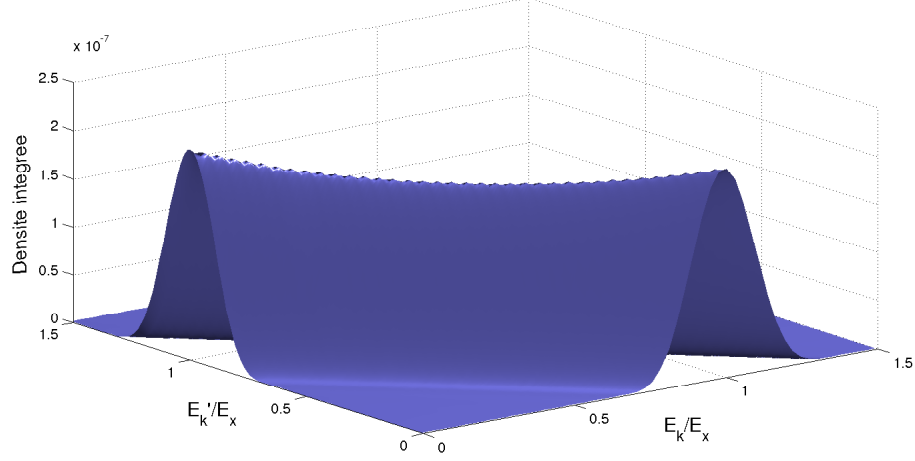


FIG. 6.12 – Distribution CV2 en énergie de la DPI ω , intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré, sans corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie, $\omega = 3,67647 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$

6.4.3 Double ionisation à deux photons

Distribution angulaire

Les distributions angulaires sont en définitive assez peu modifiées par l'emploi d'un état fondamental amélioré (cf. FIG. 6.13) en comparaison avec le cas $He(1s)^2$ (cf. FIG. 5.11). Globalement, le comportement est assez similaire dans les deux situations et nous observons tout à fait la même tendance à l'éjection privilégiée à l'opposé du premier électron (cf. FIG. 6.13 a)). La différence essentielle tient au fait que le cas où le second électron emporte la totalité de l'énergie en excès (cas rouge), se trouve émis dans la direction de polarisation ($\theta_{k'} = 0^\circ$). Cependant, les corrélations réajustent fortement les caractéristiques apportées par l'utilisation de l'état fondamental amélioré, puisque nous avons vu qu'une éjection préférentielle du second électron dans la direction du premier était prédite dans ce cas.

Distribution en énergie

Nous retrouvons dans ce cas le même comportement final qu'avec l'emploi des charges écrantées 2SC (cf. FIG. 6.14). Les configurations non-physiques sont éliminées (cf. FIG. 6.14 a)) et les cas $\varepsilon_{\vec{k}} = 0 \text{ u.a.}$ (noir) et $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,45 \text{ u.a.}$

(rouge) dominant jusqu'à $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 6.14 b)). Puis nous assistons à une inversion de tendance au delà de $\theta_{k'} = 90^\circ$ (cf. FIG. 6.14 c)), les distributions se répartissant autour de l'équipartition (cf. FIG. 6.14 d), e) et f))

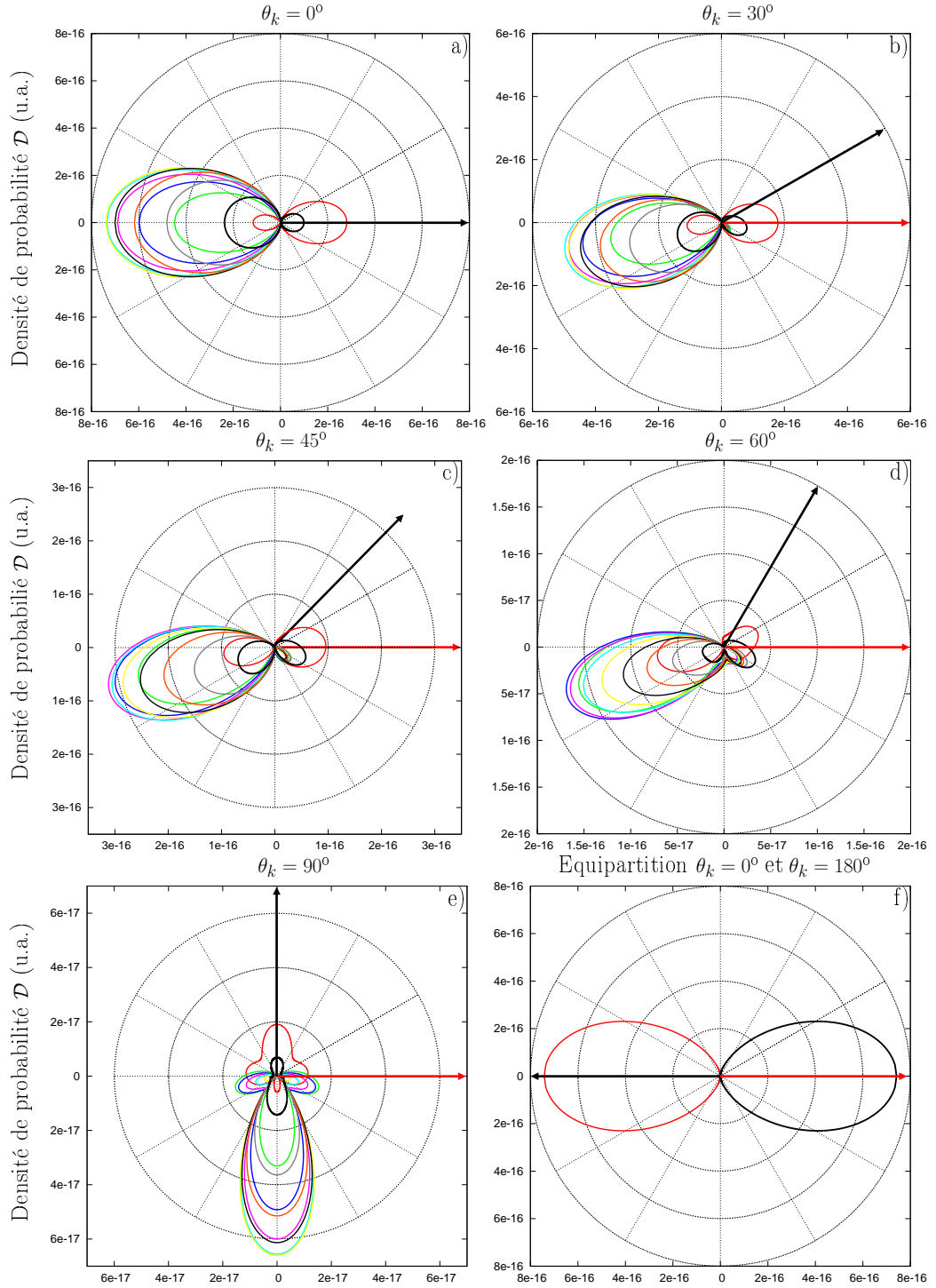


FIG. 6.13 – Distribution CV2 en angle de la DPI2 ω avec état fondamental amélioré, corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

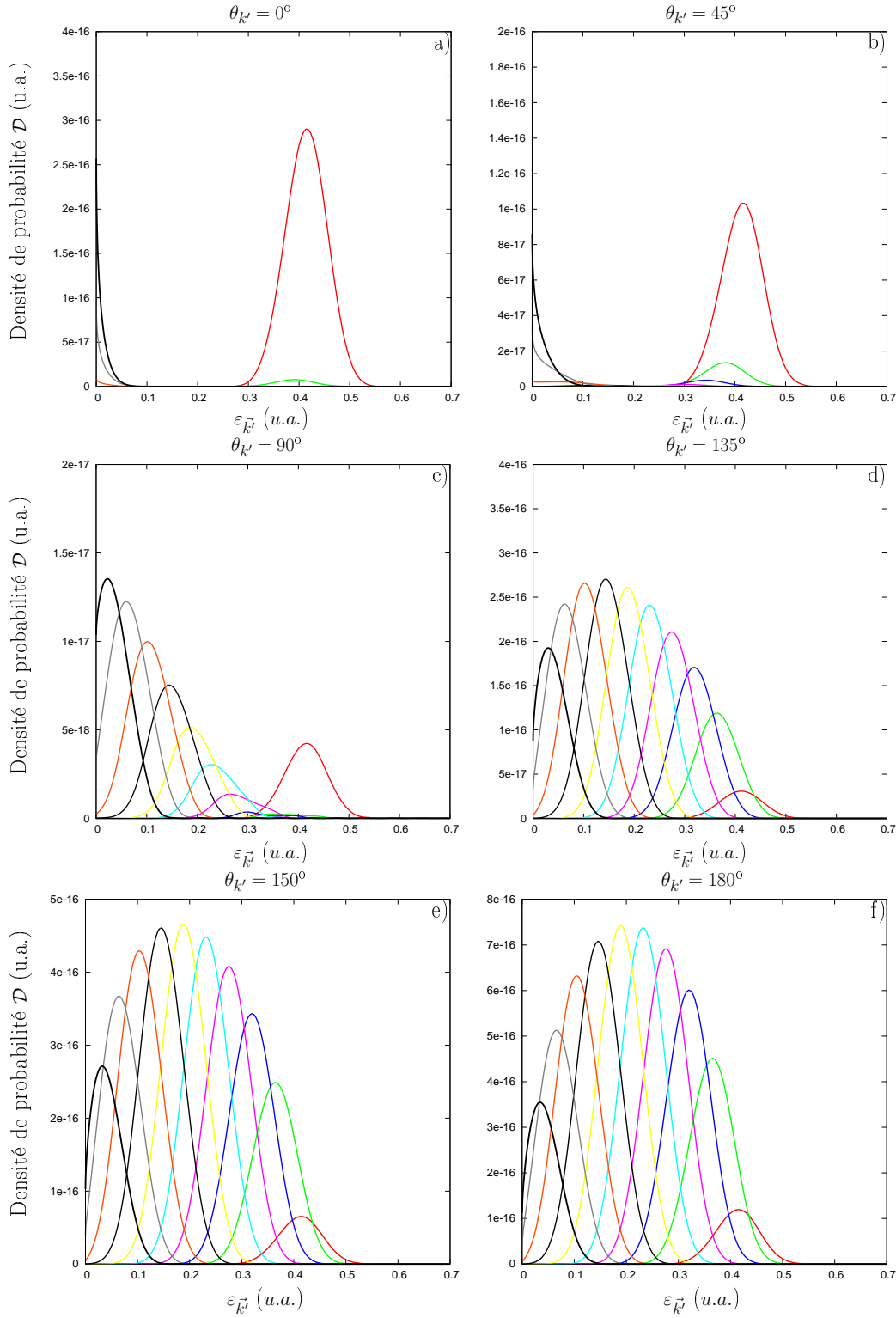


FIG. 6.14 – Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).

6.4.4 Applications de la théorie CV2 à deux photons

Profils angulaires d'éjection 3D

De la même manière que dans le cas à un photon, traçons les surfaces représentatives de l'éjection angulaire en trois dimensions pour une énergie de $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ et une amplitude de champ de $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ (cf. FIG. 6.15). Nous n'avons représenté que deux cas particuliers la répartition en énergie, le premier électron emportant $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,35 \text{ u.a.}$ et émis dans la direction symbolisée par la flèche rouge. Nous avons vérifié par ailleurs que des répartitions différentes de l'énergie présentaient des caractéristiques d'éjection tout à fait similaires.

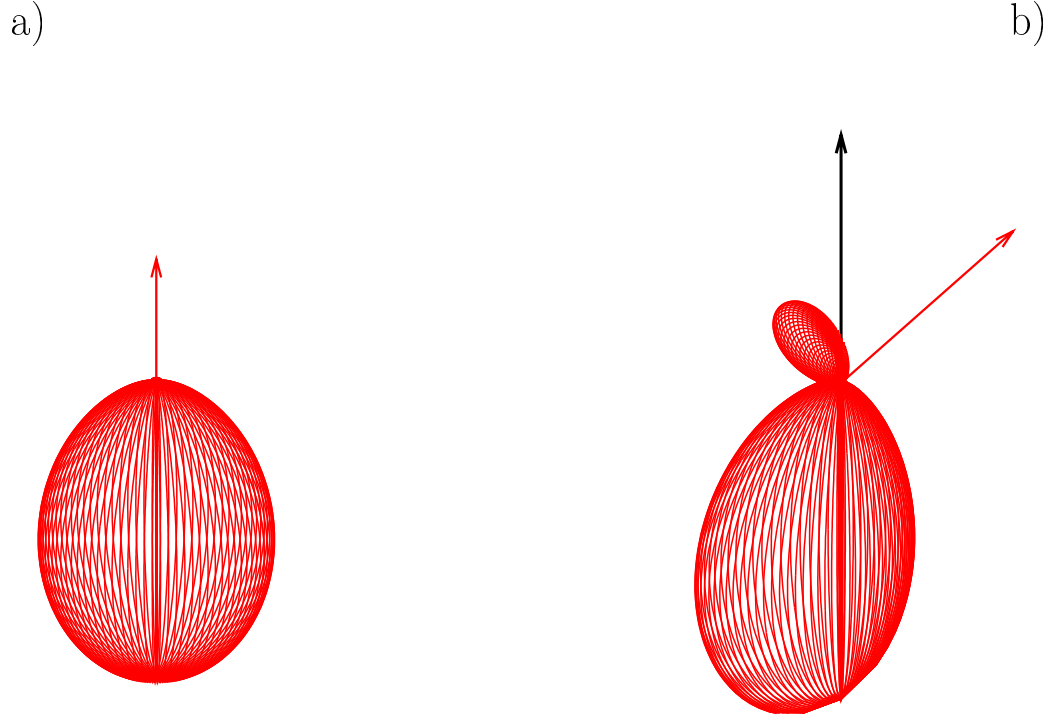


FIG. 6.15 – Profils d'éjections angulaires en trois dimensions avec $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$: a) $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,35 \text{ u.a.}$ et $\theta_k = 0^\circ$, b) $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,35 \text{ u.a.}$ et $\theta_k = 45^\circ$.

Tout comme le cas en géométrie coplanaire, nous voyons l'apparition d'un second lobe d'éjection dont la magnitude va augmenter jusqu'à ce que les deux soient symétriques pour $\theta_k = 90^\circ$. Nous illustrons ici la facilité d'étendre les calculs de notre méthode à tout l'espace.

Profils en énergie intégrés

Il s'agit comme précédemment d'intégrer la densité sur tout l'espace afin d'obtenir une distribution totale en énergie. Nous avons représenté les cas avec et sans corrélations 3C sur les FIG. 6.16 et FIG. 6.17 suivantes, normalisés à l'énergie en excès. Nous constatons clairement que la distribution en énergie à deux photons est largement répartie autour de l'équipartition avec une concavité négative prononcée. En mettant en relation ce résultat avec les distributions angulaires, nous pouvons conclure que pour cette énergie de photon, les électrons sont préférentiellement émis à 180° l'un de l'autre, emportant chacun une énergie cinétique égale. Nous pouvons également voir que ce profil est une conséquence directe des corrélations car si l'on omet les corrélations 3C dans l'état final, le profil présente une distribution quasi-uniforme (cf. FIG. 6.17).

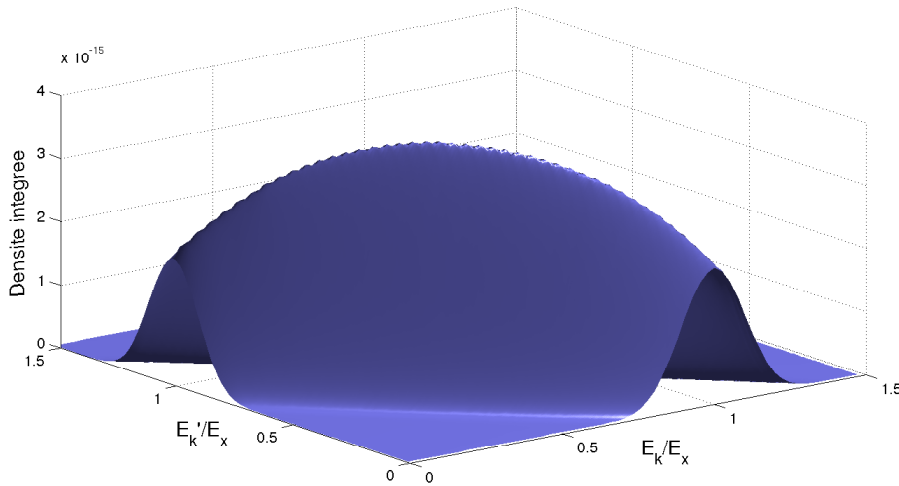


FIG. 6.16 – Distribution CV2 en angle de la DPI2 ω , intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré, corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$

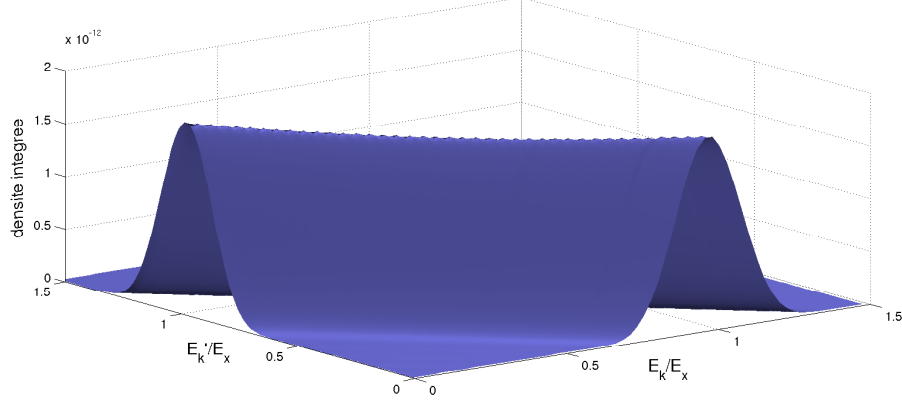


FIG. 6.17 – Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω , intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré sans corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$

6.5 Perspectives et conclusion

L'idée est à présent d'exporter le calcul en conditions de champ ultra-intense et ultra-bref. Les premiers résultats que nous présentons (cf. FIG. 6.18) sont obtenus avec des champs de $E_0 = 4 \text{ u.a.}$, $E_0 = 5 \text{ u.a.}$, $E_0 = 6 \text{ u.a.}$, $E_0 = 7 \text{ u.a.}$, $E_0 = 8 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 9 \text{ u.a.}$ correspondant respectivement à des intensités de $I = 1,404.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$, $I = 1,755.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$, $I = 2,106.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$, $I = 2,457.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$, $I = 2,808.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ et $I = 3,159.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$. Le nombre de cycles optiques est $N = 5$ avec une énergie de photon de $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ ce qui correspond à une durée d'impulsion de l'ordre de $\tau \approx 460 \text{ as}$ et pour une équipartition de l'énergie des électrons. Nous constatons que l'éjection évolue fortement d'un profil globalement dirigé à l'opposé de l'éjection du premier électron, caractéristique d'une DPI2 ω (cf. FIG. 6.18 a) et b)) vers un profil en lobe caractéristique d'une figure d'éjection à un photon (cf. FIG. 6.18 c) et d)), où l'éjection à $\theta_{k'} = 180^\circ$ est fortement atténuée (cf. FIG. 6.18 e) et f)). Nous avons vérifié pour un nombre plus élevé de cycles optiques entre $N = 5$ et $N = 30$ soit jusqu'à une durée d'impulsion $\tau \approx 2,8 \text{ fs}$, que ce phénomène se reproduit. Nous voyons donc que des comportements atypiques peuvent avoir lieu pour des conditions particulières de champ intenses. Explorer ces nouveaux domaines et expliquer ces comportements rentre tout à fait dans le cadre de notre

approche et constitue une voie vers laquelle nous pouvons nous orienter.

La prise en compte simultanée des corrélations dans l'état initial sous la forme d'orbitales supplémentaires et dans l'état final sous la forme d'une répulsion Coulombienne directe s'avère fondamentale pour une bonne description des profils d'éjection en angle et en énergie. En effet, le modèle de corrélations 3C seul ne permet que la description angulaire des cas à l'équipartition et la prise en compte d'orbitales p ouvre le champ d'application de la méthode aux configurations hors équipartition. Cependant, la dépendance des distributions angulaires à ces diverses formes de corrélation semble différente entre le cas à un ou deux photon. Ce dernier semble par exemple moins sensible à une description précise des corrélations dans l'état initial. Malgré cela, la manière dont nous prenons en compte les corrélations ne nous permet de conclure que qualitativement. Dans le chapitre suivant, nous revenons sur la section efficace totale de la DPI2 ω pour laquelle nous allons regarder le rôle des états intermédiaires, négligés dans CV2.

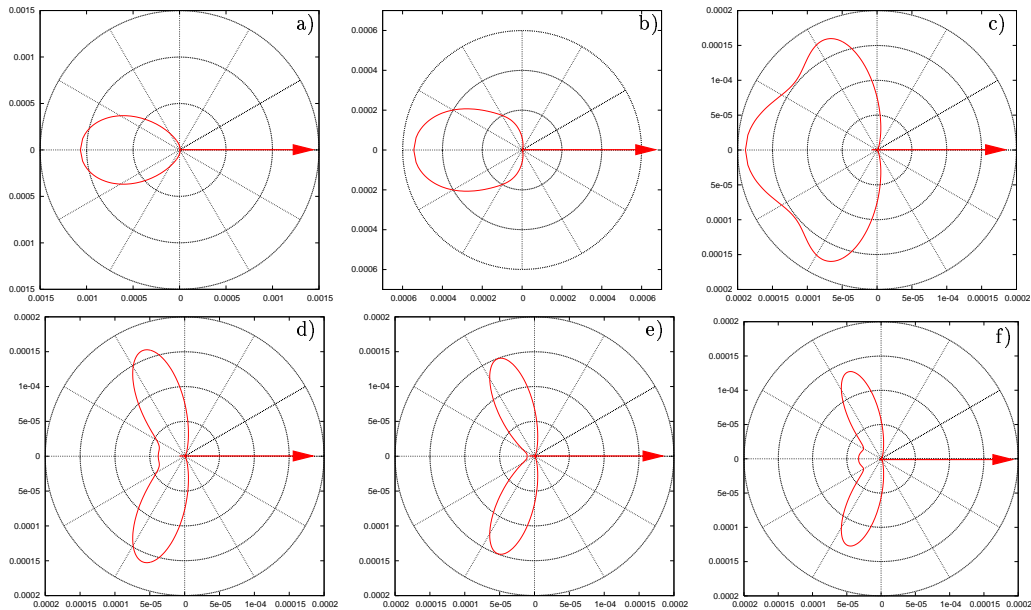


FIG. 6.18 – Etude de la distribution CV2 en angle de la DPI2 ω pour l'équipartition avec $\omega = 1,65$ u.a., état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final en fonction de l'intensité a) $E_0 = 4$ u.a., b) $E_0 = 5$ u.a., c) $E_0 = 6$ u.a., d) $E_0 = 7$ u.a., e) $E_0 = 8$ u.a., f) $E_0 = 9$ u.a.

Le rôle des états intermédiaires dans la DPI2 ω

7.1 Introduction

NOUS avons démontré (cf. §1.4.2) que les termes de transition multiphotoniques calculés par une méthode Coulomb-Volkov ne prennent pas en compte les éventuelles résonances par les états intermédiaires liés. Ceci est dû à l'absence de termes, qui, par comparaison avec les ordres correspondants aux séries de Born représentent ces processus. Pour bien illustrer la contribution de ces états, nous nous sommes donc orientés vers un développement Born au deuxième ordre (Born II) afin de comparer les résultats obtenus par CV2. Nous savons que Born II prend en compte tous les états intermédiaires au-travers d'une somme infinie, nous nous limiterons dans ce manuscrit à l'étude d'un seul d'entre eux dont nous supposons à priori être le plus important. Il s'agit de l'état $He(1s, \vec{k})$ représentant l'atome dans un état de simple ionisation (cf. FIG. 4.4). Cependant, avant d'étudier le cas Born II adapté à la DPI2 ω en particulier, nous allons développer l'amplitude de transition de manière générale.

7.2 Formalisme général

Débutons de l'élément de transition en conditions de perturbation

$$T_{fi} = -i \int_0^\tau dt \langle \Psi_f^-(t) | V(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad (7.1)$$

En suivant la démarche de [23] approchons alors l'état initial $|\Phi_i(t)\rangle$ par une

superposition d'états atomiques

$$|\Phi_i(t)\rangle \simeq |\chi_i(t)\rangle + \sum_{n>1}^N a_{n_{p0}}^{B1}(t) |\chi_{n_{p0}}(t)\rangle \quad (7.2)$$

où la quantité $a_{n_{p0}}^{B1}(t)$ représente l'amplitude de transition calculée à l'aide de l'approximation de Born I d'atteindre des états intermédiaires de symétrie p , depuis l'état fondamental i . Dans notre cas, $n = (1s, \vec{k})$, ce qui nous permet d'écrire

$$a_{(1s, \vec{k})}^{B1}(t) = -i \int_0^t dt' \langle \chi_{(1s, \vec{k})}(t') | V(t') | \chi_i(t') \rangle \quad (7.3)$$

En utilisant cette dernière expression dans (7.2) et elle-même dans (7.1) où l'on remplace également $\langle \Psi_f^-(t) |$ par $\langle \chi_f^-(t) |$, il vient

$$T_{fi} \simeq -i \int_0^\tau dt \left[\langle \chi_f^-(t) | V(t) | \chi_i(t) \rangle - i \int_0^t dt' \langle \chi_{(1s, \vec{k})}(t') | V(t') | \chi_i(t') \rangle \right. \\ \left. \times \langle \chi_f(t) | V(t) | \chi_{(1s, \vec{k})}(t) \rangle \right] \quad (7.4)$$

Que l'on réécrit

$$T_{fi} \simeq -i \int_0^\tau dt \langle \chi_f^-(t) | V(t) | \chi_i(t) \rangle - \int_0^\tau dt \langle \chi_f(t) | V(t) | \chi_{(1s, \vec{k})}(t) \rangle \\ \times \int_0^t dt' \langle \chi_{(1s, \vec{k})}(t') | V(t') | \chi_i(t') \rangle \quad (7.5)$$

Chaque terme de (7.5) représente respectivement les transitions Born au premier et second ordre. Ce dernier est celui qui nous intéresse et nous allons l'exploiter tout d'abord sans état intermédiaire, afin de comparer aux résultats CV2.

7.3 Born II sans états intermédiaires

Nous voulons vérifier si les résultats que nous avons obtenus par CV2 sont cohérents avec une approche de type Born. Pour cela, l'idée est de recalculer la section efficace à l'aide de l'amplitude de Born au second ordre sans états intermédiaires, que l'on a démontré identique à l'amplitude CV2. Elle se déduit de (7.5) et s'écrit sous la forme

$$T_{fi}^{B2} \simeq - \int_0^\tau dt E(t) A(t) \left\langle \chi_f^-(t) \left| \left[(\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \hat{\lambda} \right]^2 \right| \chi_i(t) \right\rangle \quad (7.6)$$

et l'on va décrire l'état final par la somme de fonctions Coulombiennes

$$\begin{aligned} \chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) &= N [\mathcal{C}_k^-(\vec{r}_1, t) \mathcal{C}_{k'}^-(\vec{r}_2, t) + \mathcal{C}_k^-(\vec{r}_2, t) \mathcal{C}_{k'}^-(\vec{r}_1, t)] \\ &= N [\psi_k^-(\vec{r}_1) \psi_{k'}^-(\vec{r}_2) + \psi_k^-(\vec{r}_2) \psi_{k'}^-(\vec{r}_1)] \\ &\quad \times \exp [-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'})t] \end{aligned} \quad (7.7)$$

où les ondes Coulombiennes sont définies par (2.45). Quant à l'état initial, il est décrit par le produit d'hydrogénoïdes $1s$

$$\chi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \exp(-i\varepsilon_{He}t) \quad (7.8)$$

avec $\varepsilon_{He} = -2,8476562$ u.a. et les orbitales définies en (2.39). Regardons plus précisément la perturbation

$$\begin{aligned} \left[(\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \hat{\lambda} \right]^2 &= (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2)^2 \\ &= (r_1 \cos \theta_1)^2 + (r_2 \cos \theta_2)^2 + 2r_1 r_2 \cos \theta_1 \cos \theta_2 \end{aligned} \quad (7.9)$$

Les termes en $(r \cos \theta)^2$ de (7.9) représentent l'absorption de deux photons par le même électron. Nous allons négliger volontairement ce type de couplage pour deux raisons : premièrement, nous supposons qu'en conditions de perturbation, le premier terme de transition domine dans le calcul des sections efficaces, ainsi l'absorption de deux photons par un électron serait faible en comparaison de l'absorption d'un photon par chaque électron. Deuxièmement, nous savons également que toutes ces transitions à un et deux photons sont incluses dans l'amplitude CV2. Ainsi, en réduisant la perturbation à l'absorption d'un photon par chaque électron dans l'amplitude Born II, nous pourrions mesurer par comparaison, la contribution de l'absorption de deux photons par un électron également présent dans CV2. Simplifions donc la perturbation à $2r_1 r_2 \cos \theta_1 \cos \theta_2$. Injectons à présent cette dernière expression dans (7.6) mais aussi celles de $\Phi_f^-(t)$ et $\Phi_i(t)$, il vient

$$\begin{aligned} T_{fi}^{B2} &\simeq (-i)^2 N \int_0^\tau dt E(t) A(t) \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \\ &\quad [\psi_k^{*-}(\vec{r}_1) \psi_{k'}^{*-}(\vec{r}_2) + \psi_k^{*-}(\vec{r}_2) \psi_{k'}^{*-}(\vec{r}_1)] 2r_1 r_2 \cos \theta_1 \cos \theta_2 \\ &\quad \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \exp [-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t] \end{aligned} \quad (7.10)$$

Nous remarquons que des termes entre crochets sont identiques dans l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$ et nous pouvons réécrire plus simplement l'expression précédente

$$T_{fi}^{B2} \simeq -4N \int_0^\tau dt E(t) A(t) \exp[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t] \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 r_2 \cos \theta_1 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \quad (7.11)$$

Nous voyons tout de suite apparaître une forme particulière d'intégrale $\mathcal{K}_{\vec{k}\vec{k}'}(t)$ définie comme un produit d'intégrales $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ quand $\vec{A}(t) \longrightarrow 0$

$$\begin{aligned} \mathcal{K}_{\vec{k}\vec{k}'}(t) &= \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \\ &\quad \times \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\ &= \lim_{\vec{A}(t) \rightarrow 0} \tilde{I}_{\vec{k}}(t) \tilde{I}_{\vec{k}'}(t) \end{aligned} \quad (7.12)$$

Il est facile de déduire de l'expression de $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ sa limite pour $\vec{A}(t) \rightarrow 0$ que l'on nomme $\tilde{K}_{\vec{k}}(t)$ et qui se met sous la forme (cf. Annexe D)

$$\tilde{K}_{\vec{k}}(t) = -i \frac{2^{5/2} Z_i^{3/2} (2Z_i - Z_k) k_z}{\pi \alpha^3} \exp \left[\nu \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi \right) \right] \Gamma(2 - i\nu) \quad (7.13)$$

avec $\nu = \frac{Z_k}{k}$; $Z_k = 2$; $Z_i = 1,6875$; $\varphi = \arctan \left(\frac{k}{Z_i} \right)$ et $\alpha = Z_i^2 + k^2$. De manière analogue, nous avons la limite de $\tilde{I}_{\vec{k}'}(t)$

$$\tilde{K}_{\vec{k}'}(t) = -i \frac{2^{5/2} Z_i^{3/2} (2Z_i - Z_{k'}) k'_z}{\pi \alpha'^3} \exp \left[\nu' \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi' \right) \right] \Gamma(2 - i\nu') \quad (7.14)$$

avec $\nu = \frac{Z_{k'}}{k'}$; $Z_{k'} = 2$; $Z_i = 1,6875$; $\varphi' = \arctan \left(\frac{k'}{Z_i} \right)$ et $\alpha' = Z_i^2 + k'^2$. En remplaçant chacune de ses expressions dans (7.12) nous déduisons la forme finale de T_{fi}^{B2}

$$\begin{aligned}
T_{fi}^{B2} \simeq & N \frac{2^7 Z_i^3 (2Z_i - Z_k)(2Z_i - Z_{k'})}{\pi} \frac{kk'}{\alpha\alpha'} \\
& \times \exp \left[\frac{\pi}{2} (\nu + \nu') - 2(\varphi\nu + \varphi'\nu') \right] \Gamma(2 - i\nu) \Gamma(2 - i\nu') \quad (7.15) \\
& \times \int_0^\tau dt E(t) A(t) \exp \left[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right]
\end{aligned}$$

L'un des points intéressants de ce développement est qu'avec les expressions de champ que l'on utilise, l'intégrale sur le temps est analytique et son développement est donné en annexe H. Le calcul de la probabilité totale se fait donc par la formule connue

$$\mathcal{P} = 4\pi^2 \int_0^{+\infty} dk \int_0^{+\infty} dk' \int_0^\pi d\theta_k \sin \theta_k \int_0^\pi d\theta_{k'} \sin \theta_{k'} (kk')^2 |T_{fi}^{B2}|^2 \quad (7.16)$$

La section efficace que l'on déduit de cette formule est référencée Born II (1) et reportée sur le graphe suivant (cf. FIG. 7.1). Deux conclusions s'imposent : la première confirme que les calculs CV2 effectués sont corrects mais aussi que l'essentiel de la section efficace (80% environ) est dominée par l'absorption d'un photon par chaque électron uniquement.

7.4 Born II avec état intermédiaire

A nouveau, nous allons développer une amplitude de transition Born II en considérant cette fois l'état intermédiaire $He^+(1s, \vec{k})$. Elle s'écrit alors

$$T_{fi}^{B2} \simeq - \int_0^\tau dt \left\langle \chi_f(t) \left| V(t) \right| \chi_{(1s, \vec{k})}(t) \right\rangle \int_0^t dt' \left\langle \chi_{(1s, \vec{k})}(t') \left| V(t') \right| \chi_i(t') \right\rangle \quad (7.17)$$

Intéressons nous tout d'abord au premier facteur de l'expression précédente, que l'on nomme M_1

$$M_1 = \int_0^\tau dt \left\langle \chi_f(t) \left| V(t) \right| \chi_{(1s, \vec{k})}(t) \right\rangle \quad (7.18)$$

et qui devient

$$M_1 = \int_0^\tau dt \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \chi_f^*(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \chi_{(1s, \vec{k})}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (7.19)$$

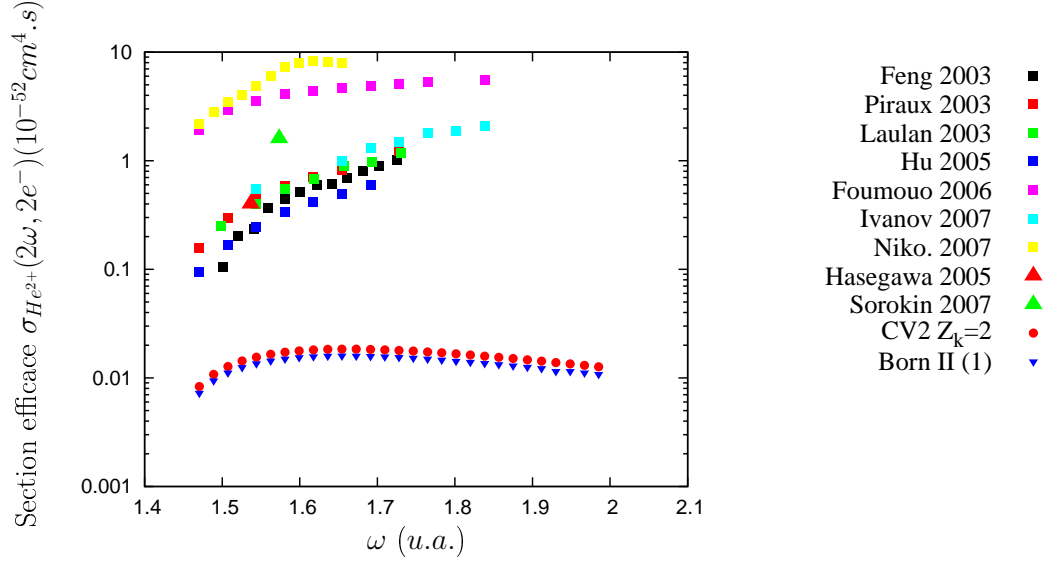


FIG. 7.1 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II sans états intermédiaires et réduite à l'absorption d'un photon par chaque électron (TS2), référencée Born II (1).

Précisons comme à chaque fois l'expression des fonctions d'onde. Nous utilisons le même état final que pour le calcul précédent c'est-à-dire (7.7). Par contre, nous allons modéliser l'état intermédiaire comme une somme symétrisée d'un produit d'une onde Coulombienne représentant l'état de l'électron éjecté dans le continuum et d'une orbitale 1s pour celui restant dans la structure ionique. Nous labelisons toutes ces fonctions par un « \oplus » afin de les distinguer des autres en particulier pour le choix des charges nucléaires.

$$\begin{aligned}
 \chi_{(1s,\vec{k})}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) &= N_j \left[\mathcal{C}_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1, t) \chi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2, t) + \mathcal{C}_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2, t) \chi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1, t) \right] \\
 &= N_j \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1) \right] \\
 &\quad \times \exp \left[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}})t \right]
 \end{aligned} \tag{7.20}$$

Il faut ajouter que dans ce cas, les transitions continu-continu ont été ignorées. On peut donc démontrer qu'avec ce type d'états l'expression finale de M_1 est (cf. Annexe I)

$$\begin{aligned}
M_1 = & -iN N_j \frac{2^{7/2} Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i^{\oplus} - Z_{k'})}{\pi} \frac{k'_z}{\alpha'^3} \exp \left[\nu' \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi' \right) \right] \Gamma(2 - i\nu') \\
& \times \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He^{\oplus}})]
\end{aligned} \tag{7.21}$$

De la même manière, nous pouvons déterminer une expression de M_2 , deuxième facteur de (7.17) (cf. Annexe I)

$$\begin{aligned}
M_2 = & -iN_j \frac{2^{13/2} Z_i^3 Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i - Z_k^{\oplus})}{\pi (Z_i^{\oplus} + Z_i)^3} \frac{k_z}{\alpha^3} \exp \left[\nu^{\oplus} \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi \right) \right] \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \\
& \times \int_0^t dt' E(t') \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}} - \varepsilon_{He})t']
\end{aligned} \tag{7.22}$$

Enfin, l'amplitude de transition s'écrit

$$\begin{aligned}
T_{fi}^{B2} \simeq & -N N_j^2 \frac{2^{10} Z_i^3 Z_i^{\oplus 3} (2Z_i^{\oplus} - Z_{k'}) (2Z_i - Z_k^{\oplus})}{\pi^2 (Z_i^{\oplus} + Z_i)^3} \frac{k_z k'_z}{(\alpha \alpha')^3} \\
& \times \exp \left[\frac{\pi}{2} (\nu' + \nu^{\oplus}) - 2(\varphi' \nu' + \varphi \nu^{\oplus}) \right] \Gamma(2 - i\nu') \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \\
& \times \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He^{\oplus}})t] \\
& \times \int_0^t dt' E(t') \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}} - \varepsilon_{He})t']
\end{aligned} \tag{7.23}$$

Encore une fois, chaque intégrale sur le temps est analytique (cf. Annexe H). L'expression du dessus représente un processus direct cohérent où un électron est excité vers un état $He(1s, \vec{k})$ durant un temps fini ; la transition vers le double continuum se faisant ensuite par l'absorption d'un deuxième photon par l'électron résiduel. Il faut noter que comme nous sommes dans le cas de la double ionisation directe ($\omega < 2 u.a.$), le processus de double ionisation ne passe donc pas par l'ionisation de He suivie de l'ionisation de He^+ .

7.4.1 Section efficace

Nous nous sommes tout d'abord intéressés au cas sans corrélations dans l'état intermédiaire, c'est-à-dire que nous avons posé $Z_i = 1,6875$ pour l'état

fondamental, $Z_i^\oplus = 2$ et $Z_k^\oplus = 2$ pour l'état intermédiaire et $Z_k = Z_{k'} = 2$ pour l'état final et la section efficace est référencée Born II (2) (cf. FIG. 7.2). Nous voyons clairement que l'état $He(1s, \vec{k})$ joue un rôle de plus en plus important au fur et à mesure que l'énergie du photon augmente. Nous pouvons également constater que le comportement est bien plus proche des autres calculs en particulier au niveau de la pente. Cependant, nous pouvons nous interroger sur le redressement visible pour $\omega > 51 \text{ eV}$. Pour cela, nous avons prolongé le calcul au-delà du seuil de double ionisation séquentielle ; référencé Born II (3) (cf. FIG. 7.3). Nous observons clairement que cette augmentation n'est pas due à une divergence, puisque les résultats sont continus. Il s'agit en définitive de la contribution importante de l'intégrale sur t de (7.23) représentant le couplage à un photon de l'état $He^+(1s)$ vers un continuum $k'p$. La différence d'énergie nécessaire pour ioniser est de 2 u.a. et dès que l'énergie du photon se rapproche de cette valeur, l'argument de l'exponentielle tend vers 0, sa contribution à l'intégrale est alors maximale. Ici, il faut noter que pour $\omega > 2 \text{ u.a.}$, on est dans le régime de DPI2 ω séquentiel avec possibilité d'ioniser He par un photon puis He^+ par absorption d'un photon supplémentaire. Ce processus n'est pas représenté par CV2 mais une prolongation de cette étude serait de l'appliquer aux temps ultra-brefs, où la relaxation vers He^+ n'a pas le temps de se faire. La validité de cette approche pourrait être étudiée dans ce contexte.

Par ailleurs, afin de regarder l'influence des corrélations à l'ordre 0, nous allons les modéliser dans l'état intermédiaire et dans l'état final par un procédé analogue à celui des charges variables. Cependant, rappelons tout d'abord comment est défini le processus de DPI2 ω décrit par le traitement Born II

$$He(1s, 1s) \xrightarrow{\omega} He(1s, \vec{k}) \xrightarrow{\omega} He(\vec{k}, \vec{k}') \quad (7.24)$$

Les deux électrons sont initialement dans un état $1s$ avec une charge $Z_i = 1,6875$. Par absorption non-résonante d'un photon, l'hélium se trouve dans un état transitoire $(1s, \vec{k})$, puis par absorption du deuxième photon dans l'état final (\vec{k}, \vec{k}') . Si l'on regarde chaque électron individuellement, le système de charges relatif à chacun d'eux est le suivant

$$\begin{array}{lll} He(1s) & \xrightarrow{\omega} & He^\oplus(\vec{k}) \longrightarrow He^{2+}(\vec{k}) \\ Z_i = 1,6875 & Z_k^\oplus = 2 & Z_k = 2 \end{array} \quad (7.25)$$

$$\begin{array}{lll} He(1s) & \longrightarrow & He^\oplus(1s) \xrightarrow{\omega} He^{2+}(\vec{k}') \\ Z_i = 1,6875 & Z_i^\oplus = 2 & Z_{k'} = 2 \end{array}$$

Nous voyons que l'un des électrons évolue d'un état du continuum $He^\oplus(\vec{k})$

vers un autre état du continuum $He^{2+}(\vec{k})$, tous deux calculés avec la même charge nucléaire. Ainsi, le recouvrement entre ces deux états sera 1. Dans les calculs qui suivent, en particulier quand nous modifierons les charges nucléaires de l'état intermédiaire, nous veillerons à toujours avoir $Z_k^\oplus = Z_k$. Ainsi, pour évaluer l'impact des effets d'écran dans cet état intermédiaire, le système de charges variables que nous avons mis en place est le suivant

$$\begin{cases} Z_k^\oplus = Z_k = 1 & \text{et} & Z_{k'} = 2 & \text{si} & k > k' \\ Z_k^\oplus = Z_k = 2 & \text{et} & Z_{k'} = 1 & \text{si} & k < k' \end{cases} \quad (7.26)$$

Sous cette forme, nous voyons très clairement que l'introduction d'un état intermédiaire et des corrélations à l'ordre 0 dans cet état a le même impact que le calcul CV2 ; résultats référencés Born II (4) (cf. FIG. 7.4). Il est donc clair que la sous-estimation de la section efficace de DPI2 ω est due à l'absence des états intermédiaires et que les corrélations au sein de chacun d'eux doivent être considérées.

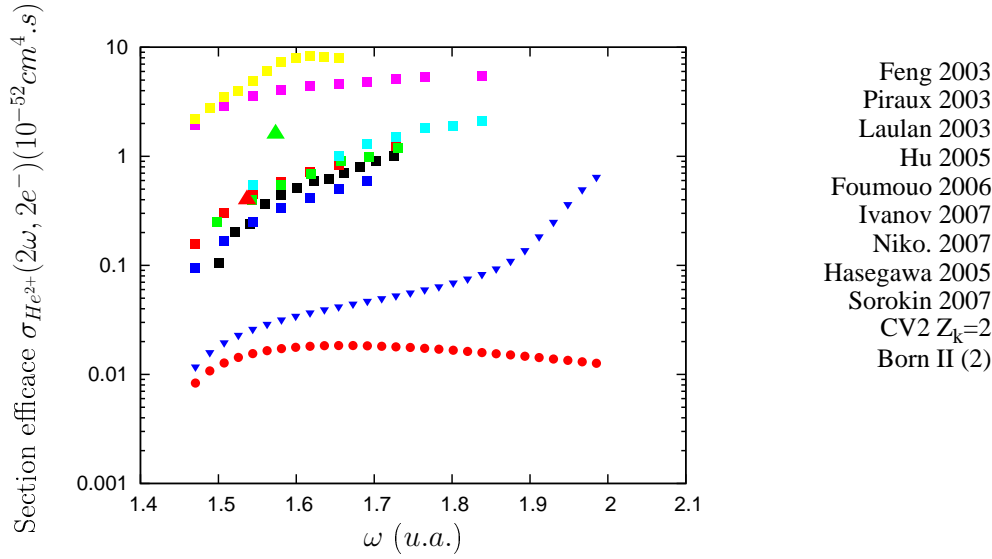


FIG. 7.2 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II avec état intermédiaire et sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, référencée Born II (2).

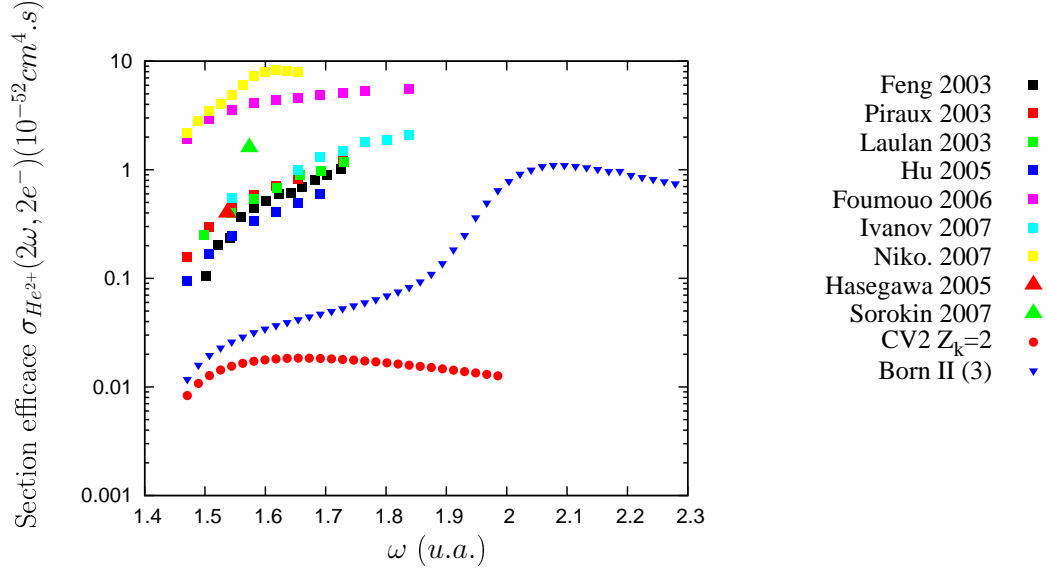


FIG. 7.3 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II avec état intermédiaire et sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, prolongée au-delà du seuil de double ionisation, référencée Born II (3).

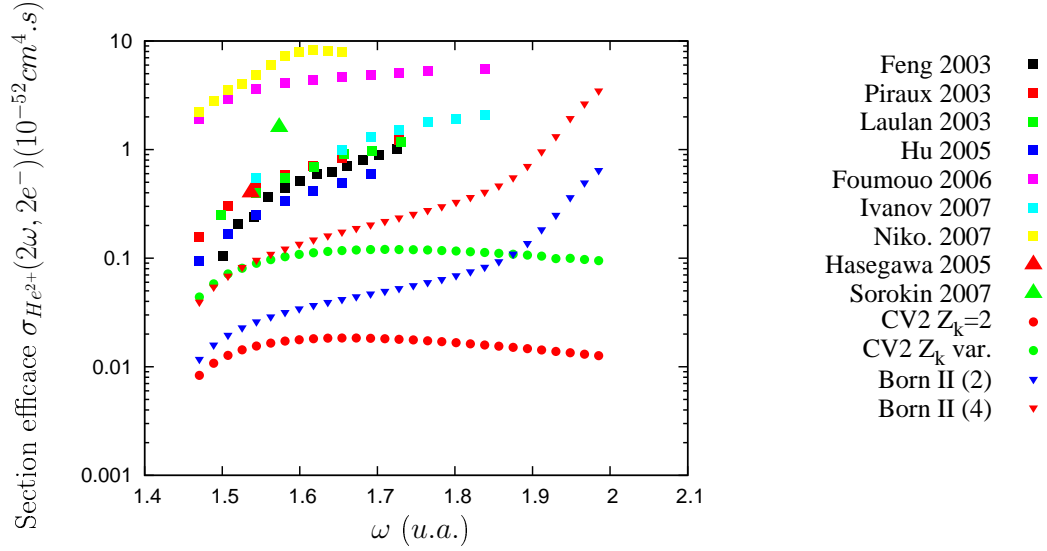


FIG. 7.4 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II avec état intermédiaire et avec corrélations variables dans l'état intermédiaire et l'état final, référencée Born II (4).

7.5 Born II avec état intermédiaire et fondamental amélioré

Nous allons développer la même amplitude de transition que précédemment avec l'état fondamental amélioré que nous avons déjà utilisé pour l'amplitude CV2. La seule différence avec précédemment tient au calcul de M_2 puisque c'est dans ce facteur qu'intervient l'état fondamental. Nous pouvons donner sa forme finale en faisant référence à l'annexe I.

$$\begin{aligned}
 M_2 = & -i \frac{N_j}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left\{ \mathcal{N} \frac{2^{13/2} (ab Z_i^\oplus)^{3/2}}{\pi} k_z \exp\left(\frac{\pi \nu^\oplus}{2}\right) \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \right. \\
 & \times \left[\frac{2a - Z_k^\oplus}{[\alpha(Z_i^\oplus + b)]^3} \exp(-2\varphi \nu^\oplus) + \frac{2b - Z_k^\oplus}{[\alpha'(Z_i^\oplus + a)]^3} \exp(-2\varphi' \nu^\oplus) \right] \\
 & + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \frac{2^{17/2} g^5 Z_i^{\oplus 3/2} (2g - Z_k^\oplus)}{\pi \alpha^3 (Z_i^\oplus + g)^5} k_z \exp\left(\frac{\pi \nu^\oplus}{2} - 2\varphi \nu^\oplus\right) \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \Big\} \\
 & \times \int_0^t dt' E(t') \exp[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^\oplus} - \varepsilon_{He})t']
 \end{aligned} \tag{7.27}$$

Utilisons cette dernière expression pour calculer l'amplitude de transition

$$\begin{aligned}
 T_{fi}^{B2} \simeq & \frac{N N_j^2}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left[\frac{2^{7/2} Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i^\oplus - Z_{k'})}{\pi} \frac{k'_z}{\alpha_1^3} \exp\left[\nu_1 \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_1\right)\right] \Gamma(2 - i\nu_1) \right] \\
 & \times \left[\mathcal{N} \frac{2^{13/2} (ab Z_i^\oplus)}{\pi} k_z \exp\left(\frac{\pi \nu^\oplus}{2}\right) \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \left(\frac{2a - Z_k^\oplus}{[\alpha_2(Z_i^\oplus + b)]^3} \exp(-2\varphi_2 \nu^\oplus) \right. \right. \\
 & + \left. \frac{2b - Z_k^\oplus}{[\alpha_3(Z_i^\oplus + a)]^3} \exp(-2\varphi_3 \nu^\oplus) \right) + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \frac{2^{17/2} g^5 Z_i^{\oplus 3/2} (2g - Z_k^\oplus)}{\pi \alpha^3 (Z_i^\oplus + g)^5} \\
 & k_z \exp\left(\frac{\pi \nu^\oplus}{2} - 2\varphi \nu^\oplus\right) \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \Big] \int_0^\tau dt E(t) \exp[i(\varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He^\oplus})t] \\
 & \times \int_0^t dt' E(t') \exp[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^\oplus} - \varepsilon_{He})t']
 \end{aligned} \tag{7.28}$$

Nous pouvons vérifier que l'utilisation d'un état fondamental plus précis a pour conséquence d'abaisser le calcul de la section efficace et sous-estime le calcul CV2 pour les faibles énergies de photon. Ce phénomène est dû à l'énergie du nouvel état fondamental qui est différente du cas $(1s)^2$. Si

on accorde arbitrairement ces énergies à $\varepsilon_i = -2,8476562 \text{ u.a.}$, le calcul de la section efficace est en meilleur accord aux basses énergies, mais sous estime de la même manière pour $\omega > 1,6 \text{ u.a.}$; les résultats sont référencés Born II (5) (cf. FIG. 7.5). Nous pouvons aussi montrer que l'essentiel de la contribution vient des orbitales $1s1s'$ de l'état fondamental, car les calculs coïncident quand on supprime les orbitales $2p$; référencés Born II (6) (cf. FIG. 7.6). En dernier point, la contribution de l'état fondamental amélioré est négligeable quand on prend en compte les corrélations radiales du type (7.26) dans l'état intermédiaire et final; ces derniers résultats sont référencés Born II (7) (cf. FIG. 7.7).

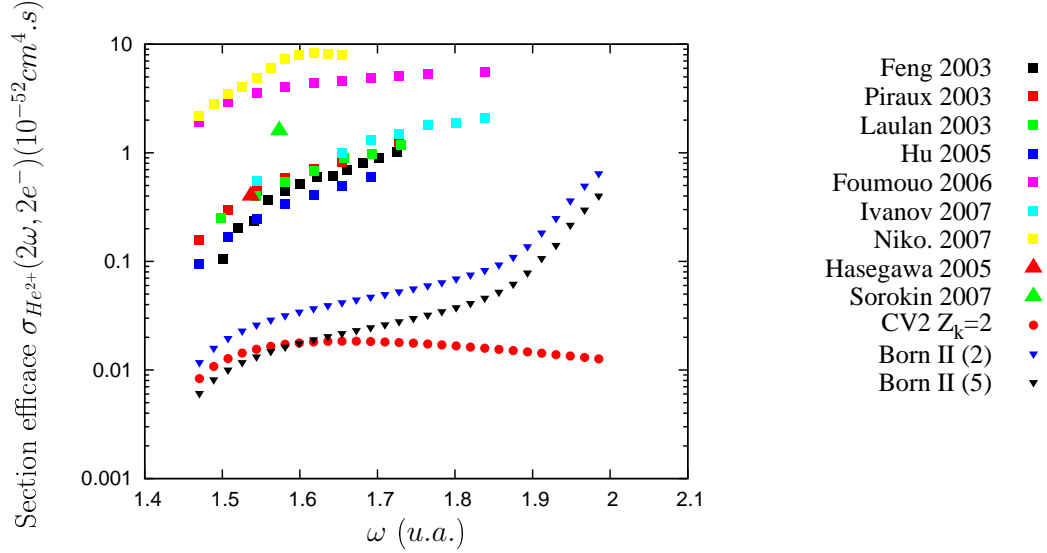


FIG. 7.5 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II avec état fondamental amélioré d'énergie $\varepsilon_i = -2,8476562 \text{ u.a.}$ sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, référencée Born II (5).

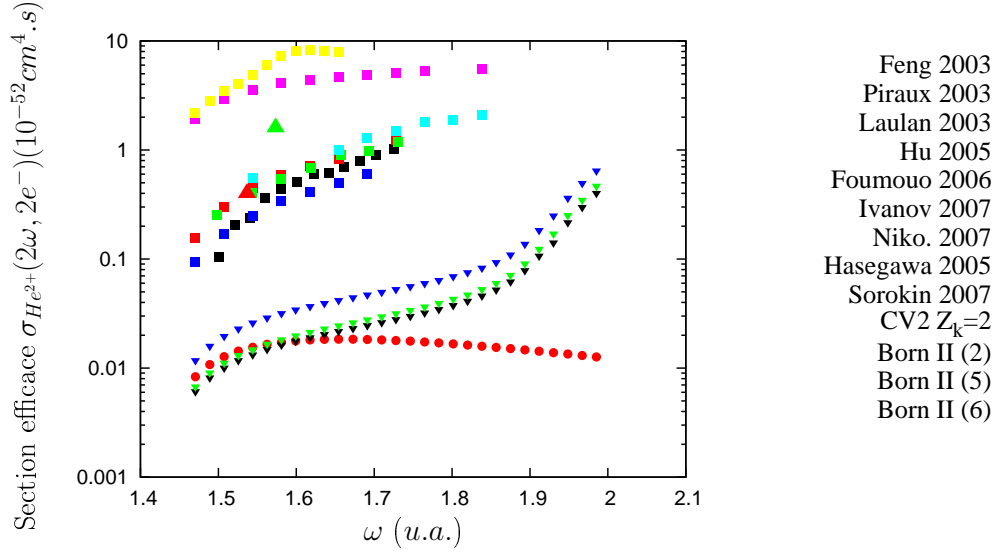


FIG. 7.6 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II avec état fondamental amélioré sans orbitales $2p$, d'énergie $\varepsilon_i = -2,8476562 u.a.$ sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, référencée Born II (6).

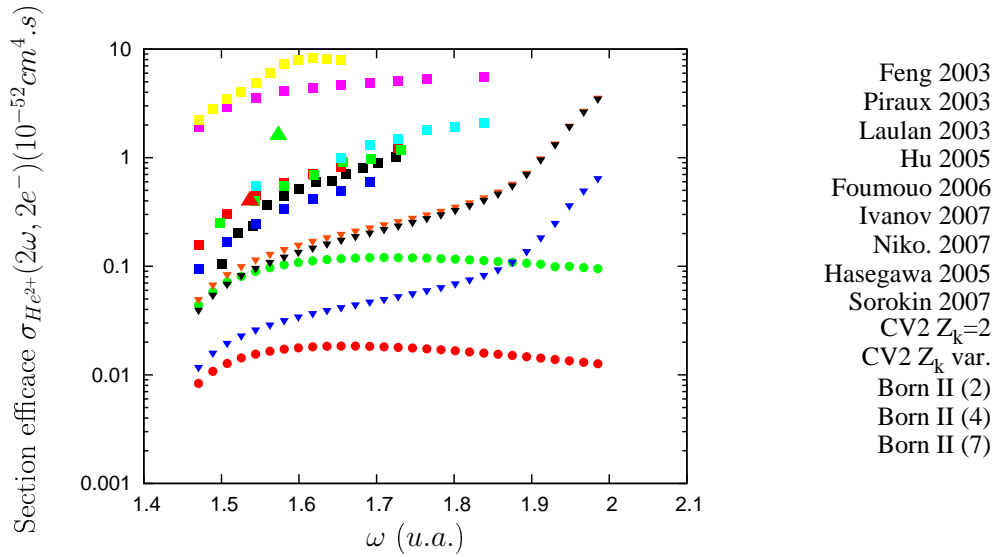


FIG. 7.7 – Section efficace totale de DPI2 ω calculée par Born II avec état fondamental amélioré d'énergie $\varepsilon_i = -2,8476562 u.a.$ avec corrélations radiales dans l'état intermédiaire, référencée Born II (7).

7.6 Conclusion

Le but de ce chapitre a été d'évaluer quelle pouvait être la contribution des états intermédiaires à la section efficace de DPI2 ω . Pour cela, nous avons développé un traitement Born II prenant explicitement en compte l'un d'eux : l'état de simple ionisation de l'hélium He^+ . Nous avons supposé qu'il jouait un rôle majeur pour ce processus. Dans ce cas, l'un des électrons est éjecté dans le continuum par l'absorption d'un photon, l'autre se retrouvant « instantanément » dans un état propre $1s$ de He^+ . Nous avons vérifié par comparaison qu'en simplifiant notre modèle Born II à la description de l'absorption directe d'un photon par chaque électron, ce mécanisme dominait dans le calcul CV2. Puis, nous avons démontré l'importance de cet état intermédiaire, atteint par l'absorption d'un photon et en particulier la dépendance du calcul aux effets d'écran pouvant y intervenir. Enfin, nous avons vu le faible impact relatif de l'état fondamental amélioré quand la transition par un état intermédiaire est rendue possible.

Conclusion

CETTE étude de la DPI de l'hélium à un et deux photons en condition de fortes intensités laser et d'impulsions brèves, nous a permis de dégager des tendances générales. Tout d'abord, nous avons mis en lumière le fait qu'une méthode CV2 de base n'était pas satisfaisante pour les distributions en angle et en énergie de chacun des cas. Nous avons ensuite vu qu'à deux photons, la disymétrie qui intervient dans la production des lobes est due à un mélange de TS2 majoritaire et d'une proportion plus faible d'un processus annexe ; l'absorption de deux photons par un électron puis du recouvrement de l'électron résiduel sur un état du continuum, conduisant en pratique à des configurations de moments angulaires (1,1) et (0,2). En ce qui concerne la section efficace totale à un photon, il s'avère que les résultats sont en très bon accord avec ceux de référence, en choisissant des charges nucléaires $Z_i = 1,6875$ et $Z_k = Z_{k'} = 2$. Cette configuration serait un optimum du calcul pour une première approche reposant sur la description d'un état fondamental à l'aide d'un produit d'orbitales $1s$ et d'un état final comme une somme antisymétrisée de fonctions Coulombiennes non corrélées. Nous avons ensuite travaillé sur les corrélations dans l'état final, afin de mieux décrire les distributions en angle et en énergie, et en particulier sur deux systèmes de charges écrantées dans l'état final (corrélations à l'ordre 0). Tous deux se sont révélés inadaptés pour les distributions lors de l'ionisation à un ou deux photons. Cependant, l'utilisation de ces systèmes donne des résultats encourageants pour la section efficace totale à deux photons, où les résultats se rapprochent sensiblement du reste des travaux disponibles. Bien que ces deux systèmes procèdent à une redistribution différente de la probabilité d'ionisation, il semble toutefois que l'écrantage de charges dans l'état final joue un rôle beaucoup plus important pour le mécanisme primaire de double ionisation à deux photons qu'à un photon. Le processus de redistribution de la probabilité vers tous les canaux ouverts (corrélations angulaires) a consti-

tué la deuxième étape de notre étude de l'interaction {électron-électron}. Sa prise en compte au moyen d'une onde Coulombienne représentant la répulsion électrostatique entre les deux électrons s'est avérée déterminante pour les distributions en angle et en énergie. Pourtant, la manière dont nous avons considéré ces corrélations dans l'état final n'a pas permis de conclure quantitativement, en particulier à propos des sections efficaces totales à un et deux photons. Bien que nous nous soyons rapprochés des résultats angulaires théoriques existants à deux photons, la description correcte des distributions angulaires à un photon s'est limitée à l'équipartition de l'excès d'énergie entre les électrons. De là s'est imposée l'étude de l'état fondamental, où la prise en compte de manière plus précise des corrélations s'est traduite par l'inclusion explicite d'orbitales $2p_0$, $2p_{\pm}$. La description de nouveaux profils hors équipartition, toujours pour le cas à un photon, a dès lors été possible. Au niveau des distributions angulaires, nous reproduisons assez bien le comportement expérimental avec toutefois un décalage dans la répartition en énergie, point qui nécessiterait un examen approfondi. Nous avons pu dans ce cadre, déterminer les distributions angulaires dans l'espace mais également des distributions en énergie intégrées sur toutes les configurations spatiales. En mettant en lien ces résultats avec ceux des distributions angulaires, nous prédisons que pour la DPI 2ω avec une énergie de photon de $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, les électrons sont préférentiellement émis à l'opposé l'un de l'autre et avec une même énergie cinétique. Enfin, nous avons étudié l'influence d'un état intermédiaire en particulier sur la DPI 2ω et montré l'importance grandissante qu'il pouvait avoir dans le processus d'ionisation double. Nous avons à ce propos soulevé la problématique des effets d'écran dans cet état et en particulier leur importance relative par rapport aux corrélations dans l'état initial. Il s'avère que ces dernières jouent un rôle moindre que les corrélations dans l'état intermédiaire lorsque celui-ci contribue à la dynamique générale du système.

Conclusion et perspectives

LE travail présenté dans ce manuscrit s'inscrit dans une thématique qui prend actuellement un essor considérable, liée à l'utilisation de rayonnements XUV brefs et intenses pour sonder la matière. Dans ces conditions et à l'échelle atomique, seuls quelques photons interviennent et la distinction entre tous les processus peut dès lors se faire plus précisément. De plus, l'utilisation d'un rayonnement présentant un large spectre multiplie les possibilités de transitions vers un grand nombre d'états atomiques. L'approche théorique que nous avons adoptée dans ce contexte est de type analytique approchée, et se fonde sur l'utilisation d'états de Coulomb-Volkov pour décrire l'état d'un système atomique en interaction à chaque instant avec une impulsion laser. Sous sa forme actuelle, elle s'avère adaptée à une large gamme d'énergies de photon et de durées d'impulsion, que l'on peut facilement étendre au régime XUV ultra-bref; toutefois, cette approche reste contrainte par l'emploi d'intensités modérées. L'objectif de ce travail a été d'exporter cette méthode vers trois nouveaux champs d'investigation : les intensités de champ laser au-delà des conditions de perturbation, les processus non-linéaires d'excitation et d'ionisation double et les systèmes multiélectroniques. Après avoir revu les grands principes de l'interaction laser-atome au chapitre 1 et décrit le développement des amplitudes de transition pour l'excitation de l'hydrogène et l'ionisation double de l'hélium au chapitre 2, l'étude de l'interaction de l'hydrogène en champ intense nous a amené à prendre en compte dans un développement Coulomb-Volkov conventionnel (CV2), le dépeuplement important de l'état fondamental au cours de l'interaction. Ceci a été réalisé dans le chapitre 3 par la résolution d'équations couplées réduites, nous donnant la population de l'état fondamental, en considérant son couplage avec le continuum dominé par la transition à un photon. Ceci se justifie par les énergies de photon élevées que l'on envisageait alors. En tout état de cause, il apparaît a posteriori que cette hypothèse est valable tant que l'intensité du laser ne permet pas aux ordres supérieurs de transition de contribuer à la même proportion que le premier ordre. Ainsi, nous reproduisons par exemple très bien les spectres d'ionisation du défaut d'un cristal, assimilé à un atome d'hydrogène, lorsque l'énergie du photon reste supérieure au potentiel d'ionisation. Nous constatons que par une procédure relativement simple, nous sommes capables d'étendre le domaine d'application à des intensités de champ jusqu'alors difficilement accessibles par une approche CV2. Nous avons par ailleurs vérifié qu'à partir des équations couplées réduites, nous pouvons déduire directement la population de l'état du continuum et qu'en conditions où la dynamique est dominée par la transition à un photon, nous prédisons très bien par ce biais le spectre en énergie des électrons éjectés. Les applications prospectives à envisager sont multiples dès lors que l'on s'intéresse à des champs intenses, de l'ordre d'une *u.a.* (soit $I = 3,51.10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$) par exemple. Dans ce

cas, aucune des théories usuelles d'ionisation par effet tunnel (KFR,ADK) ne prédit correctement les taux d'ionisation car les transitions sont calculées vers un état final de Volkov non-perturbé [17]. Nous pourrions ainsi évaluer par notre méthode CV2 renormalisée (RCV2) la contribution de l'interaction Coulombienne sur les taux d'ionisation en conditions de champ intense.

La seconde étude du chapitre 3 se focalise sur des transitions intervenant à l'aide d'énergies de photon plus petites que la moitié du potentiel d'ionisation de l'hydrogène. Il devient alors nécessaire de considérer les transitions multiphotoniques entre les états liés de sa structure atomique. En appliquant une amplitude de transition établie au chapitre 2, nous avons pu calculer la probabilité que ces phénomènes se produisent. Nous sommes parvenus à décrire correctement l'excitation multiphotonique des premiers états de l'hydrogène lorsque l'intensité du laser reste cette fois en conditions de perturbation. Cependant, restreindre cette description à seulement deux niveaux ne permet pas de décrire la dynamique via tous les autres états de la structure atomique accessibles par des photons situés dans la largeur spectrale du laser. En particulier, l'apparition de pics secondaires dans le spectre d'absorption produit par une méthode *ab initio* (résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps, ESDT) témoigne de ces passages. Toutefois, par comparaison avec des résultats du type ESDT, nous pouvons clairement identifier et évaluer la contribution des processus mis en jeu entrant dans le cadre d'une description CV2. L'une des perspectives de ce traitement appliqué aux états liés, pourrait être l'étude du doublet Autler-Townes apparaissant lors des transitions multiphotoniques par des états intermédiaires quasi-résonants. Ce doublet peut être décrit en incluant explicitement l'un de ces états dans l'état initial « réel » à l'aide d'un développement MCV2 adapté [147]. Puis, l'utilisation d'une impulsion présentant une dérive de fréquence permettrait de sélectionner le passage par l'une ou l'autre des composantes du doublet. Il s'agit donc d'étudier comment contrôler les voies (canaux) d'ionisation par des caractéristiques intrinsèques à l'impulsion laser. Par ailleurs, nous pouvons également nous orienter vers une modélisation plus générale de la structure atomique. Par exemple, par la prise en compte explicite des premiers états liés $2s$ et $2p$, puis considérer la contribution des états suivants à l'aide d'une loi en N^{-3} . Ce serait ainsi une manière de développer un traitement CV2 plus global, tout en gardant un temps de calcul court et en évitant de rentrer en compétition avec des traitements de type ESDT. De plus, puisque le cas monoélectronique semble tout à fait adapté à une description CV2, nous pouvons envisager dans ce cadre la description de spectres d'harmoniques d'ordre élevées. En considérant d'une part l'ionisation multiphotonique d'un atome vers les états du continuum par une amplitude CV2, d'autre part la recombinaison radiative à un seul photon de l'électron du

continuum vers l'état initial à l'aide d'une amplitude de type Born, il sera possible de modéliser le processus électronique de génération d'harmoniques (cf. [18] équation (62)). Le spectre harmonique pourra ensuite être déduit par une transformée de Fourier de l'amplitude de probabilité ainsi calculée. Mais également, du fait de la souplesse du traitement, en particulier pour paramétrer le champ laser incident, nous pourrions envisager des études en fonction de sa polarisation. De ce fait, nous pourrions décrire la génération d'harmoniques induites par des impulsions présentant une polarisation variant pendant la durée de l'interaction. L'objectif est de se rapprocher des protocoles expérimentaux de confinement de la génération d'harmoniques tels que la porte d'ellipticité [55] qui consiste à restreindre le temps de génération, maximum en polarisation linéaire, par une modulation de la polarisation du rayonnement IR fondamental. Plus généralement, l'étude des conséquences de l'utilisation d'un tel rayonnement polarisé sur la dynamique électronique semble accessible. Un autre sujet d'étude peut être de travailler avec une superposition de champs laser. De fait, la voie serait ouverte à la description de processus à deux couleurs : par exemple l'ionisation par une impulsion harmonique couplée à l'impulsion IR primaire atténuée. Dans ce cas, des structures satellites dénommées « bandes-latérales » (ou « side-bands ») apparaissent entre les pics d'absorption des harmoniques. Deux canaux contribuent à la production d'une bande-latérale : d'une part l'absorption d'un photon harmonique d'ordre inférieur plus un photon de l'IR, d'autre part l'absorption d'un photon harmonique d'ordre supérieur et l'émission stimulée d'un photon IR. Ce phénomène se répète pour chaque ordre de transition harmonique consécutif, c'est un processus multiphotonique. L'intensité des bandes-latérales dépend du délai de recouvrement entre les deux impulsions et l'analyse du comportement de leurs phases relatives permet d'extraire l'information sur la dérive de fréquence du train d'impulsions harmoniques [55]. Dans un premier temps, nous serions en mesure de reproduire ces structures satellites ; par la suite, la prise en compte dans notre modèle de la dérive de fréquence nous permettrait de regarder le détail des caractéristiques des bandes-latérales.

Dans un troisième temps (partie 2), nous avons effectué une étude exhaustive, sur la base de l'approche CV2, de la double ionisation de l'hélium par absorption d'un et deux photons. La double ionisation par absorption d'un photon ($\text{DPI}\omega$) ayant largement été étudiée, nous avons pu comparer notre « modèle simple » avec les résultats théoriques et expérimentaux déjà publiés. La double ionisation par absorption de deux photons ($\text{DPI}2\omega$) est quant à elle un domaine beaucoup plus ouvert, les résultats théoriques et expérimentaux divergeant à ce propos. Notre approche nous a permis d'extraire les sections efficaces totales et les distributions en angle et en énergie. Nous avons montré que les corrélations électroniques jouent des rôles très différents

dans la $DPI\omega$ et $DPI2\omega$. Nous avons tout d'abord étudié la $DPI\omega$, et montré qu'aux intensités utilisées dans ce travail, l'approche CV2 correspond à une théorie des perturbations au premier ordre (chapitre 4). Des résultats calculés par des approches fondées sur cette théorie peuvent donc être directement comparés à nos résultats. Dans notre cas, une représentation simple impliquant deux orbitales $1s$ écrantées pour l'état initial et deux Coulombiennes pour l'état final (calculées en supposant que les électrons subissent un champ créé par la même charge nucléaire $Z_k = Z_{k'} = 2$) conduit à une évaluation de la section efficace en accord avec les résultats de la $DPI\omega$ existants, sur une large gamme d'énergies de photon. Une telle représentation conduit à un couple de moments angulaires électroniques $(0,1)$ dans l'état final et est donc très incomplète. Cependant, si on excepte tout accord fortuit, on peut imaginer que ce canal représente bien le flux « primaire » de double ionisation à un photon, mais la redistribution par les corrélations électroniques entre les canaux de double ionisation de moments angulaires $(1,2)$, $(2,3)$ etc. est bien sûr absente de la représentation. Ceci est confirmé par l'analyse des distributions en angle de l'éjection des électrons qui ne correspondent pas aux résultats expérimentaux. Nous avons donc poursuivi notre étude dans le chapitre 5 par la prise en compte de l'effet des corrélations dans l'état final et par l'amélioration de l'état initial dans le chapitre 6. Nous avons appliqué dans l'état final un facteur de normalisation (« facteur de Maulbetsch ») qui prend en compte la répulsion électronique et obtenu de bons résultats pour les distributions angulaires dans le cas d'une équipartition de l'énergie des électrons émis. Il faut néanmoins noter qu'avec ce facteur, l'état final n'est plus correctement normalisé et il est impossible de calculer quantitativement des sections efficaces absolues. Lorsqu'on améliore la représentation de l'état initial en incluant des orbitales $2p$, on obtient des distributions angulaires qui se comparent bien avec les résultats théoriques et expérimentaux existant à la fois à l'équipartition et hors équipartition. De bons résultats sont aussi obtenus pour la distribution en énergie des électrons intégrée sur tout l'espace : par exemple pour des photons de 100 eV ($3,676\text{ u.a.}$) (apportant un excès d'énergie de 21 eV ($0,77\text{ u.a.}$) au-dessus du seuil de double ionisation), on obtient un profil plat relevé aux extrémités correspondant à un électron emportant la quasi-totalité de l'énergie en excès. Ce résultat est en accord avec les profils expérimentaux [214], mais aussi en bon accord avec la distribution théorique calculée par D. Proulx et R. Shakeshaft [166]. Ces derniers montrent également que pour des énergies de photon supérieures à 100 eV , le canal où un des électrons emporte la quasi-totalité de l'excès d'énergie est favorisé. Exporter notre calcul à ces énergies constitue la prochaine étape de notre travail, d'autant que des résultats expérimentaux sont disponibles avec des photons de 179 eV ($6,58\text{ u.a.}$) [195]. Nous voyons ainsi qu'il est abso-

lument nécessaire de représenter finement les corrélations électroniques à la fois dans les états initial et final pour avoir une description complète de la DPI ω au moins au niveau des distributions angulaires. Ce travail constitue donc un test positif pour le développement CV2 ; en même temps, il met en lumière les différences avec la dynamique du processus de DPI2 ω .

Pour ce mécanisme, nous avons montré que l'approche CV2 de la DPI2 ω prend en compte deux types de processus : d'une part l'absorption directe d'un photon par chacun des électrons décrit par une orbitale 1s de l'état initial (TS2), et d'autre part l'absorption de deux photons par un électron 1s et l'éjection subséquente de l'autre électron par recouvrement sur un état du continuum. Contrairement à la DPI ω , le développement de l'amplitude CV2 aux intensités modérées ne correspond pas à la théorie des perturbations au deuxième ordre (Born II). La relaxation de l'ion He^+ qui intervient lors de la double ionisation séquentielle, n'est par exemple pas représentée dans l'approche CV2. Nous pouvons cependant montrer que si l'on veut s'orienter vers l'étude de la compétition entre le processus direct et le processus séquentiel d'ionisation double, la première étape, l'ionisation simple de l'hélium, est en très bon accord avec les résultats expérimentaux (cf. FIG. 7.8). En particulier dans la région d'énergie de photon où ce processus séquentiel domine c'est-à-dire pour $\omega > 2 \text{ u.a.}$ Notre étude a donc porté sur la double ionisation directe de l'hélium avec des énergies de photon inférieures à 2 u.a. (54,42 eV). Dans le cadre de notre développement le plus simple décrit plus haut (sans corrélations dans l'état final et sans états intermédiaires), on obtient à l'équipartition de l'excès d'énergie, une distribution angulaire asymétrique de l'éjection des électrons, favorisée dans des directions opposées. Ceci est qualitativement en accord avec les résultats théoriques publiés [202] et les calculs récents effectués par H. Bachau au CELIA et B. Piraux à l'UCL. Il est important de noter que, si la section efficace totale est dominée par le TS2, il faut inclure le processus annexe d'absorption de deux photons par un électron pour représenter l'asymétrie dans la distribution des lobes éjectés. En effet, le processus TS2 conduit à un état final de moments angulaires (1,1) représenté par deux lobes symétriques. Pour le profil angulaire à l'équipartition, la prise en compte du processus annexe conduit à des configurations de moments angulaires (0,0) et (0,2) qui brisent cette symétrie. Néanmoins les résultats ne sont pas totalement satisfaisants dans la mesure où l'éjection de deux électrons dans la même direction et avec la même énergie n'est pas négligeable, ce qui est non-physique. La prise en compte de la répulsion électronique dans l'état final au-travers du « facteur de Maulbetsch » conduit à une amélioration des résultats dans le sens où la distribution angulaire est très proche des résultats récents de [202] avec une asymétrie très accentuée des lobes d'éjection. La distribution en énergie intégrée sur tout l'espace montre

quant à elle un profil parabolique maximum à l'équipartition et pour une énergie de photon de $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ (45 eV). En mettant en lien ce résultat et ceux des distributions angulaires, la principale conclusion que nous tirons est qu'à cette énergie de photon, les électrons sont préférentiellement émis dans le continuum à 180° l'un de l'autre, avec la même énergie. A la différence de la $\text{DPI}\omega$, la section efficace totale obtenue avec CV2 à l'aide du modèle de base est très inférieure aux résultats existants. Nous avons vu, dans la partie 1 consacrée à l'hydrogène en champ UV intense, que la représentation CV2, développée de façon perturbative, ne représente pas les transitions par les états intermédiaires. Il était donc intéressant de comparer les approches Born au deuxième ordre (Born II) et CV2 pour évaluer la contribution spécifique de l'un de ces états à la $\text{DPI}2\omega$. Une étude détaillée du développement Born II menée au chapitre 7 montre que l'inclusion de He^+ conduit à une augmentation significative de la section efficace de $\text{DPI}2\omega$, qui se rapproche donc des calculs référencés. Nous montrons également que l'écrantage de la charge nucléaire (corrélations à l'ordre 0) au sein de cet état sont également à considérer pour la description générale du phénomène. Notre étude de la $\text{DPI}2\omega$ nous a donc permis d'extraire des informations importantes sur la dynamique de ce processus, qui reste un sujet largement ouvert. Comme nous l'avons noté dans l'introduction, il faut considérer ce travail comme une étape vers l'étude de la double ionisation en champ laser XUV très intense. Grâce au développement du laser à électrons libres, on peut envisager la production de rayonnement XUV à des intensités importantes (de l'ordre de $10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$) avec des temps d'interaction très brefs. Il y a, à notre connaissance peu de travaux dans ce contexte, par exemple dans [215] les auteurs ont appliqué la théorie SFA à l'ionisation non-séquentielle de l'hélium en polarisation circulaire avec des photons de quelques unités atomiques. Dans une approche très prospective, ces auteurs ont considéré des intensités très élevées (de l'ordre de $10^{20} \text{ W.cm}^{-2}$) dans la limite non-relativiste et ont étudié en particulier le processus de stabilisation. Le domaine d'intensité qui nous intéresse est moins élevé ($10^{16} - 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$), pour des photons de quelques unités atomiques le paramètre de Keldysh devient inférieur à 1 : on passe ainsi du régime multiphotonique au régime non-perturbatif d'ionisation. Peut-on considérer, dans un contexte où la double ionisation se fait dans un temps bref (sans relaxation de He^+), seulement ce qui résulte de l'absorption simultanée (directe) d'un ou plusieurs photons par l'état initial ? L'approche CV2 est-elle valide dans ce contexte ? Comment évoluent les sections efficaces et les distributions en énergie et en angle ? Autant de questions qui constituent les futures voies sur lesquelles nous pouvons nous engager. En définitive, le travail que nous avons mené tout au long de ce manuscrit prend son importance quand on se place du point de vue de l'analyse détaillée du comportement électronique.

Il s'agit de posséder non pas un outil général mais bien une collection d'outils spécialisés, adaptés et modulables entre eux. Nous espérons donc avoir montré que dans le contexte actuel, une méthode Coulomb-Volkov a toute sa place.

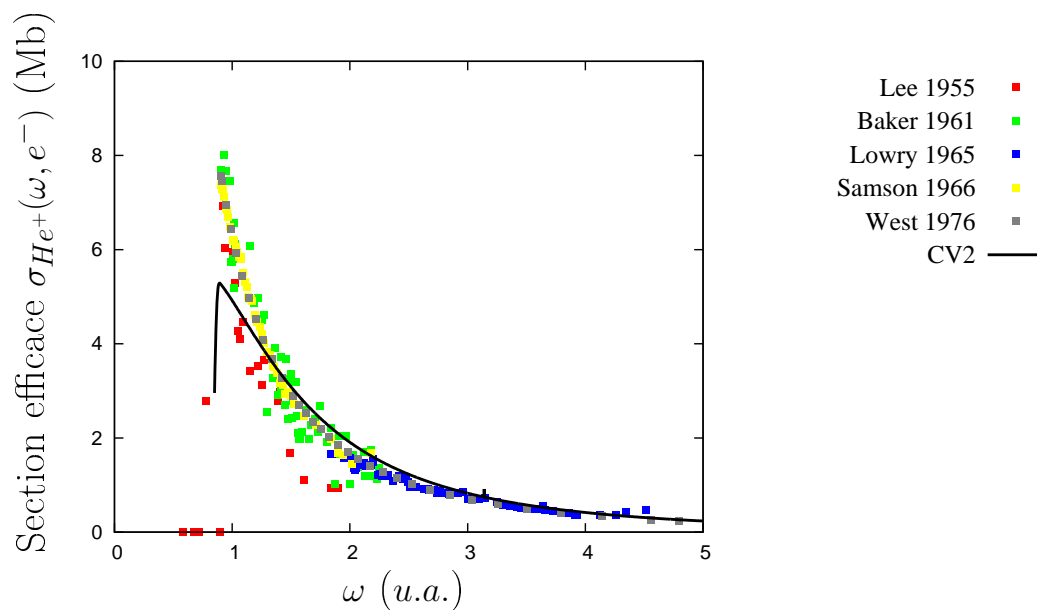


FIG. 7.8 – Section efficace totale de simple ionisation de l'hélium calculée par CV2.

Table des figures

1.1	Ionisation d'un atome d'hydrogène par une impulsion laser IR de 800 <i>nm</i>	31
1.2	Spectres en énergie des électrons éjectés créés dans l'argon par une impulsion laser IR à 800 <i>nm</i> , d'intensité crête $I = 5.10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ et de durée à mi-hauteur de 40 <i>fs</i>	32
1.3	Illustration du déplacement des niveaux dû à l'effet Stark dynamique et de l'apparition de sous-structures dans le spectre ATI.	33
1.4	Spectre harmonique généré dans l'argon par une impulsion laser IR à 800 <i>nm</i> , d'intensité crête $I = 2.10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et de durée à mi-hauteur de 30 <i>fs</i> reconstruit à partir d'une méthode SFA.	35
1.5	Spectres harmoniques expérimentaux générés dans des gaz d'argon et de krypton irradiés par une impulsion laser IR à 800 <i>nm</i> , d'intensité crête $I = 2.10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et de durée à mi-hauteur de 30-35 <i>fs</i>	36
1.6	Représentation schématique des régions de la R-matrice. . . .	41
1.7	Représentation schématique des différents régimes d'ionisation.	49
1.8	Représentation schématique d'un atome d'hélium	53
1.9	Profil temporel du champ électrique d'une impulsion laser avec une enveloppe \sin^2 d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ d'amplitude crête $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ et de $N_{cycles} = 30$	58
1.10	Transformée de Fourier d'une impulsion laser avec une enveloppe \sin^2 d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$ d'amplitude crête $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ et de $N_{cycles} = 30$	59
2.1	Système de coordonnées électroniques.	75

3.1	Densité de probabilité d'ionisation d'un cristal présentant un défaut de structure, calculée par ESDT (rouge), RCV2 (bleu) et ECR (noir).	90
3.2	Probabilité d'exciter l'état $H(2p_0)$ en fonction de $\frac{\delta}{\omega}$ calculée par CV2 (rouge) et ESDT (bleu).	99
3.3	Probabilité d'exciter l'état $H(2s)$ en fonction de $\frac{\delta}{\omega}$ calculée par CV2 (rouge), ESDT (bleu) et Born II (noir).	100
3.4	Probabilité d'exciter l'état $H(2p)$ a), et $H(2s)$ b), en fonction de $\frac{\delta}{\omega}$ calculée par ESDT avec une enveloppe \sin^2 (rouge) et gaussienne (bleu).	101
4.1	Représentation schématique de la DPI ω	118
4.2	Représentation schématique du TS1.	120
4.3	Représentation schématique du Shake-off.	121
4.4	Représentation schématique de la DPI 2ω directe et séquentielle.	122
4.5	Correspondance couleur-énergie des couples $(\varepsilon_{\vec{k}}, \varepsilon_{\vec{k}'})$ des courbes de densité pour $\omega = 3,3$ u.a. et $\varepsilon_{(1s)^2} = -2,8476562$ u.a.	129
4.6	Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé $\omega = 3,3$ u.a., $E_0 = 10^{-3}$ u.a., (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	132
4.7	Distribution CV2 en énergie de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé $\omega = 3,3$ u.a., $E_0 = 10^{-3}$ u.a., (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	133
4.8	Section efficace totale de DPI ω calculée par CV2.	134
4.9	Distribution CV2 en angle de la DPI 2ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé, $Z_i = 1,6875$ pour a), b), c) et d), $Z_i = 2$ pour e) et f), $\omega = 1,65$ u.a., $E_0 = 10^{-3}$ u.a., (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	138
4.10	Distribution CV2 en énergie de la DPI 2ω avec $He(1s)^2$ et état final non corrélé, $Z_i = 1,6875$ pour a), b) et c), $Z_i = 2$ pour d), e) et f), $\omega = 1,65$ u.a., $E_0 = 10^{-3}$ u.a., (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	139
4.11	Section efficace totale de DPI 2ω calculée par CV2.	140
5.1	Section efficace totale de DPI ω calculée par CV2 et écrantage de charge variable dans l'état final.	143
5.2	Section efficace totale de DPI 2ω calculée par CV2 et corrélations variables dans l'état final.	144

5.3	Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 2SC dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	148
5.4	Distribution CV2 en énergie de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 2SC dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	149
5.5	Section efficace totale de DPI ω calculée par CV2 avec corrélations 2SC dans l'état final.	150
5.6	Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 2SC dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	152
5.7	Section efficace totale de DPI2 ω calculée par CV2 avec corrélations 2SC dans l'état final.	153
5.8	Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	156
5.9	Distribution CV2 en énergie de la DPI ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	157
5.10	Section efficace totale de DPI ω calculée par CV2 avec corrélations 3C dans l'état final.	158
5.11	Distribution CV2 en angle de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	160
5.12	Distribution CV2 en énergie de la DPI2 ω avec $He(1s)^2$ et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs).	161
5.13	Section efficace totale de DPI2 ω calculée par CV2 avec corrélations 3C dans l'état final.	162
5.14	Distribution angulaire de la DPI ω calculée par CV2 avec 3C et équipartition de l'excès d'énergie : a) $\omega = 3 \text{ u.a.}$; b) $\omega = 4 \text{ u.a.}$; c) $\omega = 5 \text{ u.a.}$ puis dans les mêmes conditions que les figures a), e) et i) de [195] où l'énergie de $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 \text{ eV}$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 1,5 \text{ eV}$, $\varepsilon_{\vec{k}} = 50 \text{ eV}$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 50 \text{ eV}$ et $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 \text{ eV}$; $\varepsilon_{\vec{k}'} = 98,5 \text{ eV}$. Il s'agit pour notre cas des figures d), e) et f) respectivement. . .	163
6.1	Distribution CV2 en angle de la DPI ω avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	170

6.2	Distribution CV2 en énergie de la $DPI\omega$ avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	171
6.3	Section efficace totale de $DPI\omega$ calculée par CV2 avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final. . . .	172
6.4	Distribution CV2 en angle de la $DPI2\omega$ avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	173
6.5	Distribution CV2 en énergie de la $DPI2\omega$ avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	174
6.6	Section efficace totale de $DPI2\omega$ calculée par CV2 avec état fondamental amélioré sans corrélations dans l'état final. . . .	175
6.7	Distribution CV2 en angle de la $DPI\omega$ avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	177
6.8	Distribution CV2 en énergie de la $DPI\omega$ avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	178
6.9	Distribution CV2 en angles de la $DPI\omega$ avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final dans les conditions de l'article (voir texte), $\omega = 179 \text{ eV}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, a) $\varepsilon_{\vec{k}} = 100 \text{ eV}$, b) $\varepsilon_{\vec{k}} = 98,5 \text{ eV}$, c) $\varepsilon_{\vec{k}} = 90 \text{ eV}$, d) $\varepsilon_{\vec{k}} = 80 \text{ eV}$, e) équipartition $\varepsilon_{\vec{k}} = 50 \text{ eV}$, f) $\varepsilon_{\vec{k}} = 20 \text{ eV}$, g) $\varepsilon_{\vec{k}} = 10 \text{ eV}$, h) $\varepsilon_{\vec{k}} = 1,5 \text{ eV}$, i) $\varepsilon_{\vec{k}} = 0 \text{ eV}$	180
6.10	Profils d'éjections angulaires en trois dimensions avec $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$	182
6.11	Distribution CV2 en énergie de la $DPI\omega$, intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré, corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie, $\omega = 3,67647 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$	183
6.12	Distribution CV2 en énergie de la $DPI\omega$, intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré, sans corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie, $\omega = 3,67647 \text{ u.a.}$ et $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$	184
6.13	Distribution CV2 en angle de la $DPI2\omega$ avec état fondamental amélioré, corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	186
6.14	Distribution CV2 en énergie de la $DPI2\omega$ avec état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final, $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$, (cf. FIG. 4.5 pour la légende sur les couleurs). . . .	187

6.15	Profils d'éjections angulaires en trois dimensions avec $\omega = 3,3 \text{ u.a.}$: a) $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,35 \text{ u.a.}$ et $\theta_k = 0^\circ$, b) $\varepsilon_{\vec{k}} = 0,35 \text{ u.a.}$ et $\theta_k = 45^\circ$	188
6.16	Distribution CV2 en angle de la $\text{DPI}2\omega$, intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré, corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$	189
6.17	Distribution CV2 en énergie de la $\text{DPI}2\omega$, intégrée sur les angles avec état fondamental amélioré sans corrélations 3C dans l'état final et normalisée à l'excès d'énergie $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$	190
6.18	Etude de la distribution CV2 en angle de la $\text{DPI}2\omega$ pour l'équipartition avec $\omega = 1,65 \text{ u.a.}$, état fondamental amélioré et corrélations 3C dans l'état final en fonction de l'intensité a) $E_0 = 4 \text{ u.a.}$, b) $E_0 = 5 \text{ u.a.}$, c) $E_0 = 6 \text{ u.a.}$, d) $E_0 = 7 \text{ u.a.}$, e) $E_0 = 8 \text{ u.a.}$, f) $E_0 = 9 \text{ u.a.}$	191
7.1	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II sans états intermédiaires et réduite à l'absorption d'un photon par chaque électron (TS2), référencée Born II (1).	198
7.2	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II avec état intermédiaire et sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, référencée Born II (2).	201
7.3	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II avec état intermédiaire et sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, prolongée au-delà du seuil de double ionisation, référencée Born II (3).	202
7.4	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II avec état intermédiaire et avec corrélations variables dans l'état intermédiaire et l'état final, référencée Born II (4).	202
7.5	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II avec état fondamental amélioré d'énergie $\varepsilon_i = -2,8476562 \text{ u.a.}$ sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, référencée Born II (5).	204
7.6	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II avec état fondamental amélioré sans orbitales $2p$, d'énergie $\varepsilon_i = -2,8476562 \text{ u.a.}$ sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final, référencée Born II (6).	205

7.7	Section efficace totale de $\text{DPI}2\omega$ calculée par Born II avec état fondamental amélioré d'énergie $\varepsilon_i = -2,8476562 \text{ u.a.}$ avec corrélations radiales dans l'état intermédiaire, référencée Born II (7).	205
7.8	Section efficace totale de simple ionisation de l'hélium calculée par CV2.	217

Références

- [1] C.W. Robertson and P. Sprangle. A review of free-electron lasers. *Phys. Fluids B*, 1 :3–43, 1989.
- [2] H. Wabnitz, L. Bittner, A.R.B. de Castro, R. Döhrmann, P. Gürtler, T. Laarman, W. Laasch, J. Schulz, A. Swiderski, K. von Haefen, T. Möller, B. Faatz, A. Fateev, J. Feldhaus, C. Gerth, U. Hahn, E. Saldin, E. Schneidmiller, K. Sytchev, K. Tiedtke, R. Treusch, and M. Yurkov. Multiple ionization of atom clusters by intense soft x-rays from a free-electron laser. *Nature*, 420 :482, 2002.
- [3] A.A. Sorokin, M. Wellhofer, S.V. Bobashev, K. Tiedtke, and M. Richter. X-ray-laser interaction with matter and the role of multiphoton ionization : Free-electron-laser studies on neon and helium. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 75(5) :051402, 2007.
- [4] M. Nagasono, E. Suljoti, A. Pietzsch, F. Hennies, M. Wellhofer, J.-T. Hoeft, M. Martins, W. Wurth, R. Treusch, J. Feldhaus, J.R. Schneider, and A. Fohlisch. Resonant two-photon absorption of extreme-ultraviolet free-electron-laser radiation in helium. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 75(5) :051406, 2007.
- [5] H. Mashiko, A. Suda, and K. Midorikawa. Focusing coherent soft-x-ray radiation to a micrometer spot size with an intensity of 10^{14} w/cm². *Opt. Lett.*, 29(16) :1927–1929, 2004.
- [6] H. Hasegawa, E.J. Takahashi, Y. Nabekawa, K.L. Ishikawa, and K. Midorikawa. Multiphoton ionization of he by using intense high-order harmonics in the soft-x-ray region. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 71(2) :023407, 2005.
- [7] P. Antoine, D.B. Milošević, A. L’Huillier, M.B. Gaarde, P. Salières, and M. Lewenstein. Generation of attosecond pulses in macroscopic media. *Phys. Rev. A*, 56(6) :4960–4969, Dec 1997.

- [8] P.M. Paul, E.S. Toma, P. Berger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, and H.G. Muller. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292 :2689, 2001.
- [9] C. Iaconis and I.A. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 23(10) :792–794, 1998.
- [10] J. Ullrich, R. Moshammer, R. Dörner, O. Jagutski, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, and L. Spielberger. Recoil-ion momentum spectroscopy. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 30 :2917–2974, 1997.
- [11] D.B. Milosevic, G.G. Paulus, D. Bauer, and W. Becker. Above-threshold ionization by few-cycle pulses. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 39 :R203–R262, 2006.
- [12] D.M. Volkov. *Z. Phys.*, 94 :250, 1935.
- [13] L.V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20 :1307–1314, 1965.
- [14] F.H.M. Faisal. Multiple absorption of laser photons by atoms. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 6 :L89–L92, 1973.
- [15] H.R. Reiss. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. *Phys. Rev. A*, 22(5) :1786–1813, Nov 1980.
- [16] M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 91 :2008–2013, 1986.
- [17] D. Bauer and P. Mulser. Exact field ionization rates in the barrier-suppression regime from numerical time-dependent schrödinger-equation calculations. *Phys. Rev. A*, 59(1) :569–577, Jan 1999.
- [18] A. Becker and F.H.M. Faisal. Intense-field many-body s-matrix theory. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 :R1–R56, 2005.
- [19] A. de Bohan, B. Piraux, L. Ponce, R. Taïeb, V. Vénier, and A. Maquet. Direct and indirect pathways in strong field atomic ionization dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 89(11) :113002, Aug 2002.
- [20] M. Jain and N. Tzoar. Compton scattering in the presence of coherent electromagnetic radiation. *Phys. Rev. A*, 18(2) :538–545, Aug 1978.
- [21] G. Duchateau, E. Cormier, H. Bachau, and R. Gayet. Coulomb-volkov approach of atom ionization by intense and ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. A*, 63(5) :053411, Apr 2001.
- [22] G. Duchateau, E. Cormier, and R. Gayet. Coulomb-volkov approach of ionization by extreme-ultraviolet laser pulses in the subfemtosecond regime. *Phys. Rev. A*, 66(2) :023412, Aug 2002.

- [23] V.D. Rodriguez, E. Cormier, and R. Gayet. Ionization by short uv laser pulses : Secondary above-threshold-ionization peaks of the electron spectrum investigated through a modified coulomb-volkov approach. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 69(5) :053402, 2004.
- [24] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Comm.*, 56 :219–221, 1985.
- [25] M. Ferray, A. L’Huillier, X.F. Li, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus. Multiple-harmonic conversion of 1046 nm radiation in rare gases. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 21 :L31–L35, 1988.
- [26] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I.A. McIntyre, K. Boyer, and C.K. Rohdes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4 :595–601, 1987.
- [27] J.L. Hall, E.J. Robinson, and L.M. Branscomb. Laser double-quantum photodetachment of i^- . *Phys. Rev. Lett.*, 14(25) :1013–1016, Jun 1965.
- [28] G.S. Voronov and N.B. Delone. Many photon ionization of the xenon atom by ruby laser radiation. *Sov. Phys. JETP*, 23 :54–58, 1966.
- [29] L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, S. Repoux, and J. Thebault. Multiphoton ionization of rare gases at very high laser intensity (10^{15} w/cm²) by a 30-psec laser pulse at 1.06 μ m. *Phys. Rev. Lett.*, 36(16) :949–952, Apr 1976.
- [30] L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, and J. Thebault. Multiphoton ionization of rare gases by a tunable-wavelength 30-psec laser pulse at 1.06 μ m. *Phys. Rev. A*, 15(4) :1604–1612, Apr 1977.
- [31] A. L’Huillier, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus. Multiply charged ions formed by multiphoton absorption processes in the continuum. *Phys. Rev. Lett.*, 48(26) :1814–1817, Jun 1982.
- [32] A. L’Huillier, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption processes in rare-gas atoms at 1.064 μ m. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 16(8) :1363–1381, Apr 1983.
- [33] X. Tang, A. Lyras, and P. Lambropoulos. Dynamics of resonances rapidly shifting under short laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 63(9) :972–975, Aug 1989.
- [34] X. Tang, H. Rudolph, and P. Lambropoulos. Nonperturbative approach to atomic multiphoton processes under intense, short laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 65(26) :3269–3272, Dec 1990.

- [35] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N.K. Rahman. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42(17) :1127–1130, Apr 1979.
- [36] P. Kruit, J. Kimman, H.G. Muller, and M.J. van der Wiel. Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, and 355 nm. *Phys. Rev. A*, 28(1) :248–255, Jul 1983.
- [37] P. Agostini, J. Kupersztych, L.A. Lompré, G. Petite, and F. Yergeau. Direct evidence of ponderomotive effects via laser pulse duration in above-threshold ionization. *Phys. Rev. A*, 36(8) :4111–4114, Oct 1987.
- [38] P.H. Bucksbaum, R.R. Freeman, M. Bashkansky, and McIlrath T.J. Role of the ponderomotive potential in above-threshold ionization. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4 :760–764, 1987.
- [39] H.G. Muller, P. Agostini, and C. Petite. *Atoms in Intense Laser Fields*. Academic Press, 1992.
- [40] E. Cormier, D. Garzella, P. Breger, P. Agostini, G. Chériaux, and C. Leblanc. Above-threshold ionization contrast and channel closure in argon. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 34 :L9–L17(1), 2001.
- [41] H.J. Humpert, H. Schwier, R. Hippler, and H.O. Lutz. Angular distribution of photoelectrons from above-threshold ionization of xe. *Phys. Rev. A*, 32(6) :3787–3789, Dec 1985.
- [42] G. Petite, P. Agostini, and H.G. Muller. Intensity dependence of non-perturbative above-threshold ionization spectra : experimental study. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 21 :4097–4105, 1988.
- [43] H.G. Muller, A. Tip, and M.J. van der Viel. Ponderomotive force and ac stark shift in multiphoton ionisation. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 16 :L679–L685, 1983.
- [44] Z. Deng and J.H. Eberly. Multiphoton absorption above ionization threshold by atoms in strong laser fields. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2 :486–494, 1985.
- [45] H.G. Muller and A. Tip. Multiphoton ionization in strong fields. *Phys. Rev. A*, 30(6) :3039–3050, Dec 1984.
- [46] L. Pan, L. Jr. Armstrong, and J.H. Eberly. Comments on the effect of the ponderomotive potential in the above-threshold ionization processes. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3 :1319–1322, 1986.
- [47] J. Morelle, D. Normand, and G. Petite. Resonance shifts in the multiphoton ionization of cesium atoms. *Phys. Rev. A*, 14(1) :300–312, Jul 1976.

- [48] R.R. Freeman, P.H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M.E. Geusic. Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 59(10) :1092–1095, Sep 1987.
- [49] H. Rudolph, X. Tang, H. Bachau, P. Lambropoulos, and E. Cormier. Theory of intense-field ionization and above-threshold ionization of helium through multiple resonances. *Phys. Rev. Lett.*, 66(25) :3241–3244, Jun 1991.
- [50] G.H.C. New and J.F. Ward. Optical third-harmonic generation in gases. *Phys. Rev. Lett.*, 19(10) :556–559, Sep 1967.
- [51] A. L’Huillier and P. Balcou. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 70(6) :774–777, Feb 1993.
- [52] T. Ditmire, E.T. Gumbrell, R.A. Smith, J.W.G. Tisch, D.D. Meyerhofer, and M.H.R. Hutchinson. Spatial coherence measurement of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 77(23) :4756–4759, Dec 1996.
- [53] M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M.B. Gaarde, T.W. Hänsch, A. L’Huillier, and C.-G. Wahlström. Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 81(2) :297–300, Jul 1998.
- [54] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and P. Balcou. Global optimization of high harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 90(19) :193901, May 2003.
- [55] A. Zaïr. *Production et caractérisation d’impulsions attosecondes VUV par génération d’harmoniques d’ordre élevé*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2006.
- [56] H.B. Van Linden van der Heuvell and H.G. Muller. *Multiphoton Processes*. Cambridge Univ. Press, 1988.
- [57] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13) :1994–1997, Sep 1993.
- [58] K.C. Kulander, K.J. Schafer, and J.L. Krause. *Proceedings of the NATO Advanced Research Workshop SILAP III*. Plenum, 1993.
- [59] M. Lewenstein, P. Balcou, M.Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P.B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49(3) :2117–2132, Mar 1994.
- [60] G.G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther. Plateau in above threshold ionization spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 72(18) :2851–2854, May 1994.

- [61] B. Yang, K.J. Schafer, B. Walker, K.C. Kulander, P. Agostini, and L.F. DiMauro. Intensity-dependent scattering rings in high order above-threshold ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(23) :3770–3773, Dec 1993.
- [62] D. Andrick and L. Langhans. Measurement of free-free transitions in e–ar scattering. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 9 :L459–L461, 1976.
- [63] A. Weingartshofer, J.K. Holmes, G. Caudle, E.M. Clarke, and H. Krüger. Direct observation of multiphoton processes in laser-induced free-free transitions. *Phys. Rev. Lett.*, 39(5) :269–270, Aug 1977.
- [64] N.M. Kroll and K.M. Watson. Charged-particle scattering in the presence of a strong electromagnetic wave. *Phys. Rev. A*, 8(2) :804–809, Aug 1973.
- [65] G.J. Pert. Inverse bremsstrahlung absorption in large radiation fields during binary collisions-classical theory. *J. Phys. A*, 5 :506–516, 1972.
- [66] L. Schlessinger and J. Wright. Inverse-bremsstrahlung absorption rate in an intense laser field. *Phys. Rev. A*, 20(5) :1934–1945, Nov 1979.
- [67] A. Brantov, W. Rozmus, R. Sydora, C. E. Capjack, V. Yu. Bychenkov, and V. T. Tikhonchuk. Enhanced inverse bremsstrahlung heating rates in a strong laser field. *Physics of Plasmas*, 10(8) :3385–3396, 2003.
- [68] K.C. Kulander. Multiphoton ionization of hydrogen : A time-dependent theory. *Phys. Rev. A*, 35(1) :445–447, Jan 1987.
- [69] J. Parker, K.T. Taylor, Clark C.W., and S. Blodgett-Ford. Intense-field multiphoton ionization of two-electron atom. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 29 :L33–L42, 1996.
- [70] E.S. Smyth, J.S. Parker, and K.T. Taylor. Numerical integration of the time-dependent schrödinger equation for laser-driven helium scattering. *Comp. Phys. Comm.*, 114 :1, 1998.
- [71] J. Zhang and P. Lambropoulos. Non-perturbative time-dependant theory and ati in two-electrons atoms. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 28 :L101, 1995.
- [72] E. Cormier and P. Lambropoulos. Above-threshold ionization spectrum of hydrogen using b-spline function. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 30 :77–91, 1997.
- [73] H. Bachau, E. Cormier, P. Decleva, J.E. Hansen, and F. Martin. Applications of b-splines in atomic and molecular physics. *Rep. Prog. Phys.*, 64 :1815–1942, 2001.
- [74] I. Bray and A.T. Stelbovics. Convergent close-coupling calculations of electron-hydrogen scattering. *Phys. Rev. A*, 46(11) :6995–7011, Dec 1992.

- [75] I. Bray and A.T. Stelbovics. *Ad. At. Mol. Opt. Phys.* Academic Press, 1995.
- [76] A.S. Kheifets and I. Bray. Photoionization with excitation and double photoionization of the helium isoelectronic sequence. *Phys. Rev. A*, 58(6) :4501–4511, Dec 1998.
- [77] A.S. Kheifets and I. Bray. Calculation of circular dichroism in helium double photoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 81(21) :4588–4591, Nov 1998.
- [78] T.N. Rescigno, M. Baertschy, W.A. Isaacs, and C.W. McCurdy. Collisional breakup in a quantum system of three charged particles. *Science*, 286 :2474, 1999.
- [79] T.N. Rescigno and C.W. McCurdy. Numerical grid methods for quantum-mechanical scattering problems. *Phys. Rev. A*, 62(3) :032706, Aug 2000.
- [80] C.W. McCurdy, D.A. Horner, T.N. Rescigno, and F. Martin. Theoretical treatment of double photoionization of helium using a b-spline implementation of exterior complex scaling. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 69(3) :032707, 2004.
- [81] M. Rotenberg. Application of strumian functions to the schroedinger three-body problem : Elastic e^+ -h scattering. *Ann. Phys.*, 19 :262–278, 1962.
- [82] D.F. Gallaher and L. Wilets. Coupled-state calculations of proton-hydrogen scattering in the sturmian representation. *Phys. Rev.*, 169(1) :139–149, May 1968.
- [83] R. Shakeshaft. Sturmian basis functions in the coupled state impact parameter method for h^+ +h scattering. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 8 :1114–1129, 1975.
- [84] B. Piraux and R. Shakeshaft. Norm of the wave function on a complex basis. *Phys. Rev. A*, 49(5) :3903–3908, May 1994.
- [85] E. Huens, B. Piraux, A. Bugacov, and M. Gajda. Numerical studies of the dynamics of multiphoton processes with arbitrary field polarization : Methodological considerations. *Phys. Rev. A*, 55(3) :2132–2143, Mar 1997.
- [86] G. Lagmago Kamta, B. Piraux, and A. Scrinzi. Configuration-interaction approach for high-lying singly and doubly excited states of two-electron systems. *Phys. Rev. A*, 63(4) :040502, Mar 2001.
- [87] S. Chu and J. Cooper. Threshold shift and above-threshold multiphoton ionization of atomic hydrogen in intense laser fields. *Phys. Rev. A*, 32(5) :2769–2775, Nov 1985.

-
- [88] P.G. Burke, C.J. Noble, and V.M. Burke. *Ad. At. Mol. Opt. Phys. : R-matrix Theory and Atomic, Molecular and Optical Processes*. Academic Press, 2006.
- [89] C. de Boor. *A Pratical Guide to Splines*. Springer-Verlag, 1978.
- [90] E. Hairer, S.P. Norsett, and G. Wanner. *Solving Ordinary Differential Equations I*. Springer, 1993.
- [91] E. Cormier. *Etude théorique de l'interaction entre un système à 1 ou 2 électrons actifs dans un champ laser intense*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 1994.
- [92] P.G. Burke, P. Francken, and C.J. Joachain. R-matrix-floquet theory of multiphoton processes. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 24 :761–790, 1991.
- [93] E.P. Wigner. Resonance reactions and anomalous scattering. *Phys. Rev.*, 70(1-2) :15–33, Jul 1946.
- [94] E.P. Wigner. Resonance reactions. *Phys. Rev.*, 70(9-10) :606–618, Nov 1946.
- [95] E.P. Wigner and L. Eisenbud. Higher angular momenta and long range interaction in resonance reactions. *Phys. Rev.*, 72(1) :29–41, Jul 1947.
- [96] G. Floquet. Sur les équations différentielles linéaires à coefficients périodiques. *Annales scientifiques de l'E.N.S. 2^{ème} série, tome 12*, 12 :47–88, 1883.
- [97] A.J.F. Siegert. On the derivation of the dispersion formula for nuclear reactions. *Phys. Rev.*, 56(8) :750–752, Oct 1939.
- [98] U. Fano. Stark effect of nonhydrogenic rydberg spectra. *Phys. Rev. A*, 24(1) :619–622, Jul 1981.
- [99] M. Dörr, P.G. Burke, C.J. Joachain, C.J. Noble, J. Purvis, and M. Terao-Dunseath. R-matrix-floquet theory of multiphoton processes : Iii. multiphoton ionization of atomic hydrogen. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 26 :L275–L280, 1993.
- [100] J. Purvis, M. Dörr, M. Terao-Dunseath, C. J. Joachain, P. G. Burke, and C. J. Noble. Multiphoton ionization of h^- and he in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 71(24) :3943–3946, Dec 1993.
- [101] C. McKenna and H.W. Van der Hart. Multiphoton ionization cross sections of neon and argon. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 37 :457–470, 2004.
- [102] M. Madine and H.W. Van der Hart. Single- and two-photon ionization of sr. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 :1895–1905, 2005.

- [103] O. Latinne, N.J. Kylstra, M. Dörr, J. Purvis, M. Terao-Dunseath, C.J. Joachain, P.G. Burke, and C.J. Noble. Laser-induced degeneracies involving autoionizing states in complex atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 74(1) :46–49, Jan 1995.
- [104] E. Costa i Bricha, C.L.S. Lewis, and H.W. Van der Hart. Multiphoton ionization of Ar^{7+} in two color laser field using R-matrix floquet theory. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 37 :2755–2770, 2004.
- [105] R. Gebarowski, P.G. Burke, K.T. Taylor, M. Dörr, M. Bensaid, and C.J. Joachain. R-matrix-floquet theory of multiphoton processes :x. theory of harmonic generation. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 30 :1837–1846, 1997.
- [106] M. Terao-Dunseath and K.M. Dunseath. R-matrix floquet theory for laser-assisted electron-atom scattering. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 35 :125–140, 2002.
- [107] C.J. Joachain. *Quantum collision theory*. Elsevier, 1979.
- [108] P. Lambropoulos. *Ad. At. Mol. Phys. : Topics on multiphoton processes in atoms*. Academic Press, 1976.
- [109] J.H. Yee. Four-photon transition in semiconductors. *Phys. Rev. B*, 3(2) :355–360, Jan 1971.
- [110] F. Adduci, I. M. Catalano, A. Cingolani, and A. Minafra. Direct and indirect two-photon processes in layered semiconductors. *Phys. Rev. B*, 15(2) :926–931, Jan 1977.
- [111] S. Augst, D.D. Meyerhofer, D. Strickland, and S.L. Chin. Laser ionization of noble gases by coulomb-barrier suppression. *J Opt. Soc. Am. B*, 8 :858–868, 1991.
- [112] U. Mohideen, M.H. Sher, H.W.K. Tom, G.D. Aumiller, O.R. Wood, R.R. Freeman, J. Boker, and P.H. Bucksbaum. High intensity above-threshold ionization of He. *Phys. Rev. Lett.*, 71(4) :509–512, Jul 1993.
- [113] A. Szöke. *Atomic and Molecular Processes with Short Intense Laser Pulses*. Plenum, 1987.
- [114] M. D. Perry, A. Szoke, O. L. Landen, and E. M. Campbell. Nonresonant multiphoton ionization of noble gases : Theory and experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 60(13) :1270–1273, Mar 1988.
- [115] J. Bauer. Comment on “theoretical studies of the long-range coulomb potential effect on photoionization by strong lasers”. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 71(6) :067401, 2005.
- [116] K. Mishima, M. Hayashi, J. Yi, S.H. Lin, H.L. Selzle, and E.W. Schlag. Generalization of keldysh’s theory. *Phys. Rev. A*, 66(3) :033401, Sep 2002.

- [117] C.C. Chirila and R.M. Potvliege. Low-order above-threshold ionization in intense few-cycle laser pulses. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 71(2) :021402, 2005.
- [118] A.M. Peremolov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev. Ionization of atoms in an alternating electric field. *Sov. Phys. JETP*, 23 :924–935, 1966.
- [119] L.D. Landau and E.M. Lifshitz. *Quantum Mechanics*. 1978.
- [120] H.W. Van der Hart, Doherty B.J.S., Parker J.S., and Taylor K.T. Benchmark multiphoton ionization rates for he at 390 nm. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 :L207–L214, 2005.
- [121] M. Wickenhauser, X.M. Tong, D.G. Arbo, J. Burgdorfer, and C.D. Lin. Signatures of tunneling and multiphoton ionization in the electron-momentum distributions of atoms by intense few-cycle laser pulses. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 74(4) :041402, 2006.
- [122] G. Duchateau. *Etude de l'ionisation d'atomes par des impulsions laser intenses et ultrabrèves*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2001.
- [123] T. Tajima and J.M. Dawson. Laser electron accelerator. *Phys. Rev. Lett.*, 43(4) :267–270, Jul 1979.
- [124] W.C. Henneberger. Perturbation method for atoms in intense light beams. *Phys. Rev. Lett.*, 21(12) :838–841, Sep 1968.
- [125] H.R. Reiss and V.P. Krainov. Approximation for a coulomb-volkov solution in strong fields. *Phys. Rev. A*, 50(2) :R910–R912, Aug 1994.
- [126] T. Brabec, M.Y. Ivanov, and P.B. Corkum. Coulomb focusing in intense field atomic processes. *Phys. Rev. A*, 54(4) :R2551–R2554, Oct 1996.
- [127] G.L. Yudin and M.Y. Ivanov. Physics of correlated double ionization of atoms in intense laser fields : Quasistatic tunneling limit. *Phys. Rev. A*, 63(3) :033404, Feb 2001.
- [128] S. Basile, F. Trombetta, G. Ferrante, R. Burlon, and C. Leone. Multiphoton ionization of hydrogen by a strong multimode field. *Phys. Rev. A*, 37(3) :1050–1052, Feb 1988.
- [129] S. Basile, F. Trombetta, and G. Ferrante. Multiphoton multichannel ionization of hydrogen with elliptically polarized light. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 21 :L377–L382, 1988.
- [130] S. Basile, F. Trombetta, and G. Ferrante. Twofold symmetric angular distributions in multiphoton ionization with elliptically polarized light. *Phys. Rev. Lett.*, 61(21) :2435–2437, Nov 1988.

- [131] P. Cavaliere, G. Ferrante, and C. Leone. Particle-atom ionising collisions in the presence of a laser radiation field. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 13 :4495–4507, 1980.
- [132] J. Banerji and M.H. Mittleman. Electron-atom ionising collisions in the presence of a low-frequency laser field. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 14 :3717–3725, 1981.
- [133] C.J. Joachain, P. Francken, A. Maquet, P. Martin, and V. Veniard. $(e, 2e)$ collisions in the presence of a laser field. *Phys. Rev. Lett.*, 61(2) :165–168, Jul 1988.
- [134] P. Martin, V. Veniard, A. Maquet, P. Francken, and C.J. Joachain. Electron-impact ionization of atomic hydrogen in the presence of a laser field. *Phys. Rev. A*, 39(12) :6178–6189, Jun 1989.
- [135] X.J. Chen. Multiple-scattering expansion for $(e, 2e)$ collisions in the presence of a laser field. *Phys. Rev. A*, 40(4) :1795–1803, Aug 1989.
- [136] J.Z. Kamiński, A. Jaroń, and F. Ehlotzky. Coulomb effects in multiphoton above-threshold ionization. *Phys. Rev. A*, 53(3) :1756–1761, Mar 1996.
- [137] D.B. Milošević and F. Ehlotzky. X-ray photoionization in the presence of a bichromatic laser field. *Phys. Rev. A*, 57(4) :2859–2866, Apr 1998.
- [138] L.P. Presnyakov, H. Tawara, I. Yu Tolstikhina, and D.B. Uskov. Double ionization of atomic helium under heavy ion impact. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 28 :785–793, 1995.
- [139] G. Duchateau and R. Gayet. Ionization of alkali-metal atoms by ultra-short laser pulses. *Phys. Rev. A*, 65(1) :013405, Dec 2001.
- [140] R. Guichard, H. Bachau, E. Cormier, R. Gayet, and V.D. Rodriguez. In-depth analysis of coulomb-volkov approaches to ionization and excitation by laser pulses. *Phys. Scr.*, 76 :397–409, 2007.
- [141] R. Gayet. Renormalized coulomb-volkov approach to strong ionization by femtosecond laser pulses. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 :3905–3916, 2005.
- [142] C. Eckart. The theory and calculation of screening constants. *Phys. Rev.*, 36(5) :878–892, Sep 1930.
- [143] R. Guichard and R. Gayet. Approach to ionization by intense laser pulses through a reduced set of coupled state equations. *Phys. Rev. A*, 74 :1402, 2006.
- [144] B.N. Yatsenko, H. Bachau, A.N. Belsky, J. Gaudin, G. Geoffroy, S. Guizard, P. Martin, G. Petite, A. Philippov, and A.N. Vasil'ev. Creation

- of high energy electronic excitations in inorganic insulators by intense femtosecond laser pulses. *Phys. Stat. Sol. (c)*, 2 :240–243, 2005.
- [145] A. Messiah. *Quantum Mechanics*. Dover Publications, 2000.
- [146] S.H. Autler and C.H. Townes. Stark effect in rapidly varying fields. *Phys. Rev.*, 100(2) :703–722, Oct 1955.
- [147] V.D. Rodriguez. Positronium ionization by short uv laser pulses : Splitting of the n peaks by rabi oscillations. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 247 :105–111, 2006.
- [148] K.C. Kulander. Time-dependent hartree-fock theory of multiphoton ionization : Helium. *Phys. Rev. A*, 36(6) :2726–2738, Sep 1987.
- [149] M.S. Pindzola, D.C. Griffin, and C. Bottcher. Validity of time-dependent hartree-fock theory for the multiphoton ionization of atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 66(18) :2305–2307, May 1991.
- [150] M.S. Pindzola, P. Gavras, and T.W. Gorczyca. Time-dependent unrestricted hartree-fock theory for the multiphoton ionization of atoms. *Phys. Rev. A*, 51(5) :3999–4004, May 1995.
- [151] B. Walker, B. Sheehy, L.F. DiMauro, P. Agostini, K.J. Schafer, and K.C. Kulander. Precision measurement of strong field double ionization of helium. *Phys. Rev. Lett.*, 73(9) :1227–1230, Aug 1994.
- [152] D.N. Fittinghoff, P.R. Bolton, B. Chang, and K.C. Kulander. Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 69(18) :2642–2645, Nov 1992.
- [153] E.A. Hylleraas and J. Midtdal. Ground state energy of two-electron atoms. *Phys. Rev.*, 103(3) :829–830, Aug 1956.
- [154] E.A. Hylleraas and John Midtdal. Ground-state energy of two-electron atoms. corrective results. *Phys. Rev.*, 109(3) :1013–1014, Feb 1958.
- [155] T. Kinoshita. Ground state of the helium atom. *Phys. Rev.*, 105(5) :1490–1502, Mar 1957.
- [156] C.L. Pekeris. Ground state of two-electron atoms. *Phys. Rev.*, 112(5) :1649–1658, Dec 1958.
- [157] J.N. Silverman, O. Platas, and F.A. Matsen. Simple configuration-interaction wave functions. i. two-electrons ions : A numerical study. *J. Chem. Phys.*, 32 :1402–1406, 1960.
- [158] C. Schwartz. Ground state of the helium atom. *Phys. Rev.*, 128(3) :1146–1148, Nov 1962.
- [159] F.W. Byron and C.J. Joachain. Correlation effects in atoms. i. helium. *Phys. Rev.*, 146(1) :1–8, Jun 1966.

- [160] F.W. Byron and C.J. Joachain. Correlation effects in atoms. ii. angular correlations between electrons. *Phys. Rev.*, 157(1) :1–6, May 1967.
- [161] F.W. Byron and C.J. Joachain. Correlation effects in atoms. iii. four-electron systems. *Phys. Rev.*, 157(1) :7, May 1967.
- [162] T.A. Carlson. Double electron ejection resulting from photo-ionization in the outermost shell of he, ne, and ar, and its relationship to electron correlation. *Phys. Rev.*, 156(1) :142–149, Apr 1967.
- [163] R.L. Brown. Double photoionization of helium. *Phys. Rev. A*, 1(3) :586–590, Mar 1970.
- [164] E.A. Hylleraas. Neue berechnung der energie des heliums im grundzustande, sowie des tiefsten terms von ortho-helium. *Z. Phys.*, 54 :347, 1929.
- [165] J.S. Briggs and V. Schmidt. Differential cross sections for photo-double-ionization of the helium atom. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 33 :R1–R48, January 2000.
- [166] D. Proulx and R. Shakeshaft. Double ionization of helium by a single photon with energy 89–140 ev. *Phys. Rev. A*, 48(2) :R875–R878, Aug 1993.
- [167] M. Pont and R. Shakeshaft. Absolute triply differential cross sections for double photoionization of helium at 10, 20, and 52.9 ev above threshold. *Phys. Rev. A*, 51(4) :R2676–R2679, Apr 1995.
- [168] F. Maulbetsch and J.S. Briggs. Angular distribution of electrons following double photoionization. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 26 :1679–1696, 1993.
- [169] F. Maulbetsch and J.S. Briggs. The angular distribution of equal-energy electrons following double photoionization. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 26 :L647–L652, 1993.
- [170] F. Maulbetsch and J.S. Briggs. Double photoionization in the case of unequal energy sharing. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 27 :4095–4104, 1994.
- [171] F. Maulbetsch, M. Pont, J.S. Briggs, and Shakeshaft R. Angular distributions for double photoionization of helium : a comparative study. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 28 :L341–L347, 1995.
- [172] M. Brauner, J.S. Briggs, and H. Klar. Triply-differential cross sections for ionisation of hydrogen atoms by electrons and positrons. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 22 :2265–2287, 1989.
- [173] S. Jetzke and F.H.M. Faisal. Coulomb correlations in electron and positron impact ionization of hydrogen at intermediate and higher energies. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 25 :1543–1558, 1992.

- [174] M. Pont, R. Shakeshaft, F. Maubetsch, and J.S. Briggs. Angular distributions for double photoionization of helium : Discrepancies between theory and experiment. *Phys. Rev. A*, 53(5) :3671–3674, May 1996.
- [175] A. Huetz, P. Lablanquie, L. Andric, P. Selles, and J. Mazeau. Multicoincidence measurements of double photoionization of helium. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 27 :L13–L18, 1994.
- [176] A.S. Kheifets and I. Bray. Calculation of double photoionization of helium using the convergent close-coupling method. *Phys. Rev. A*, 54(2) :R995–R997, Aug 1996.
- [177] A.S. Kheifets and I. Bray. Application of the ccc method to calculations of helium double-photoionization triply differential cross sections. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 31 :L447–L453, 1998.
- [178] L.A.A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos. Multichannel theory of two-photon single and double ionization of helium. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 34 :545–564, 2001.
- [179] L.A.A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos. Time-dependent theory of double ionization of helium under xuv radiation. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 40 :1347–1357, 2007.
- [180] G.H. Wannier. The threshold law for single ionization of atoms or ions by electrons. *Phys. Rev.*, 90(5) :817–825, Jun 1953.
- [181] A.K. Kazansky and V.N. Ostrovsky. Energy sharing and angular distribution in the double photoionization of helium. *Phys. Rev. A*, 51(5) :3698–3702, May 1995.
- [182] A.K. Kazansky and V.N. Ostrovsky. Wannier-ridge theory of angular distribution. *Phys. Rev. A*, 51(5) :3712–3717, May 1995.
- [183] A.K. Kazansky and V.N. Ostrovsky. Electron correlation in double photoionization : Comparative study of secondary structure for ne and xe. *Phys. Rev. A*, 52(2) :1775–1778, Aug 1995.
- [184] J.M. Feagin. Fourth-order wannier threshold theory. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 28 :1495–1516, 1995.
- [185] J.M. Feagin. Recoil-ion angular distributions following double photoionization. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 29 :L551–L559, 1996.
- [186] C. Bouri, P. Selles, M. Malegat, J.M. Teuler, M. Kwato Njock, and A.K. Kazansky. Dynamics of the helium atom close to the full fragmentation threshold : Ionization excitation. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 72(4) :042716, 2005.

- [187] C. Bouri, P. Selles, L. Malegat, and M.G. Kwato Njock. Dynamics of the helium atom close to the full fragmentation threshold : Double ionization. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 73(2) :022724, 2006.
- [188] C. Bouri, P. Selles, L. Malegat, and M.G. Kwato Njock. Parabolic versus spherical partial cross sections for photoionization excitation of he near threshold. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 74(3) :032704, 2006.
- [189] O. Schwarzkopf, B. Krässig, J. Elmiger, and V. Schmidt. Energy- and angle-resolved double photoionization in helium. *Phys. Rev. Lett.*, 70(20) :3008–3011, May 1993.
- [190] O. Schwarzkopf, B. Krässig, V. Schmidt, M. Maulbetsch, and J.S. Briggs. Unequal energy sharing in the angle-resolved double photoionization cross section of helium. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 27 :L347–L350, 1994.
- [191] P. Lablanquie, J. Mazeau, L. Andric, P. Selles, and A. Huetz. Effect of electron energy sharing on the double photoionization of helium near threshold. *Phys. Rev. Lett.*, 74(12) :2192–2195, Mar 1995.
- [192] R. Dörner, H. Bräuning, J.M. Feagin, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, T. Vogt, H. Khemliche, M.H. Prior, J. Ullrich, C.L. Cocke, and H. Schmidt-Böcking. Photo-double-ionization of he : Fully differential and absolute electronic and ionic momentum distributions. *Phys. Rev. A*, 57(2) :1074–1090, Feb 1998.
- [193] H. Bräuning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A.S. Kheifets, I. Bray, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking. Absolute triple differential cross sections for photo-double ionization of helium-experiment and theory. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 31 :5149–5160, 1998.
- [194] A. Knapp, A. Kheifets, I. Bray, Th. Weber, A. L. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L.P.H. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M.H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C.L. Cocke, and R. Dörner. Mechanisms of photo double ionization of helium by 530 ev photons. *Phys. Rev. Lett.*, 89(3) :033004, Jun 2002.
- [195] A. Knapp, A. Kheifets, I. Bray, Th. Weber, A.L. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L.P.H. Schmidt, M. Schöffler, T. Osipov, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C.L. Cocke, and R. Dörner. Photo double ionization of helium 100 ev and 450 ev above threshold : I. linearly polarized light. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 :615–633, 2005.

- [196] J. Colgan and M.S. Pindzola. Core-excited resonance enhancement in the two-photon complete fragmentation of helium. *Phys. Rev. Lett.*, 88(17) :173002, Apr 2002.
- [197] L. Feng and H.W. Van der Hart. Two-photon double ionization of helium. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 36 :L1–L7, 2003.
- [198] B. Piraux, J. Bauer, S. Laulan, and H. Bachau. Probing electron-electron correlation with attosecond pulses. *Eur. Phys. J. D*, 26 :7–13, 2003.
- [199] S.X. Hu, J. Colgan, and L.A. Collins. Triple-differential cross-sections for two-photon double ionization of he near threshold. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 38 :L35–L45, 2005.
- [200] E. Fomouuo, G. Lagmago Kamta, G. Edah, and B. Piraux. Theory of multiphoton single and double ionization of two-electron atomic systems driven by short-wavelength electric fields : An ab initio treatment. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 74(6) :063409, 2006.
- [201] A. S. Kheifets and I. A. Ivanov. Convergent close-couplings calculations of two-photon double ionization of helium. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 39 :1731–1742, 2006.
- [202] I. A. Ivanov and A. S. Kheifets. Two-photon double ionization of helium in the region of photon energies 42–50 ev. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 75(3) :033411, 2007.
- [203] R. Dörner, H. Schmidt-Böcking, T. Weber, T. Jahnke, M. Schlöffer, A. Knapp, M. Hattass, A. Czasch, L.P.H. Schmidt, and O. Jagutzki. Double ionization by one and many photons. *Rad. Phys. Chem.*, 70 :191–206, 2004.
- [204] J.A.R. Samson. Proportionality of electron-impact ionization to double photoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 65(23) :2861–2864, Dec 1990.
- [205] A.S. Kheifets, A. Ipatov, M. Arifin, and I. Bray. Double-photoionization calculations of the helium metastable $2^{1,3}s$ states. *Phys. Rev. A*, 62(5) :052724, Oct 2000.
- [206] T. Schneider, P.L. Chocian, and J.M. Rost. Separation and identification of dominant mechanisms in double photoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 89(7) :073002, Jul 2002.
- [207] D. Proulx and R. Teng, Z.and Shakeshaft. *Super-Intense Laser-Atom Physics*. Plenum Press, 1993.
- [208] M. Pont and R. Shakeshaft. Absolute cross sections for double photoionization of helium at energies from 0 to 80 ev above threshold. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 28 :L571–L577, 1995.

- [209] M.R.H. Rudge and M.J. Seaton. Ionization of atomic hydrogen by electron impact. *Royal Society of London Proceedings Series A*, 283 :262–290, January 1965.
- [210] R.K. Peterkop. Asymptotic behavior of charged particle wave functions. *Sov. Phys. JETP*, 16 :442–444, 1963.
- [211] H. Ehrhardt, G. Knoth, P. Schlemmer, and K. Jung. Absolute $h(e,2e)p$ cross section measurements : comparison with first and second order theory. *Phys. Lett.*, 110A :92–95, 1985.
- [212] H. Bräuning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking. Recoil ion and electronic angular asymmetry parameters for photo double ionization of helium at 99 ev. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 30 :L649–L655, 1997.
- [213] S. Laulan. *Etude des atomes d'hélium et de béryllium en champ laser bref et intense*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2004.
- [214] V. Achler, M. Mergel, L. Spielberger, R. Dörner, Y. Azuma, and H. Schmidt-Böcking. Photo double ionization of he by circular and linear polarized single-photon absorption. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 34 :965–981, 2001.
- [215] J. Bauer and K. Rzazewski. Sfa applied to the nonsequential double ionization of the helium atom by a circular polarized plane wave. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 29 :3351–3362, 1996.
- [216] A. Nordsieck. Reduction of an integral in the theory of bremsstrahlung. *Phys. Rev.*, 93(4) :785–787, Feb 1954.

Annexes

Annexe A

Le système d'unités atomiques

MESURER, c'est comparer une grandeur physique inconnue avec une grandeur de même nature prise comme référence. Ainsi, la physique atomique nécessite un système de mesure adapté à la description de systèmes microscopiques tels que les atomes et les molécules : ce sont les unités atomiques (*u.a.*). Pour ce faire, il faut définir un jeu de trois paramètres permettant de reconstruire une masse, une longueur et un temps adaptés aux dimensions étudiées. Or, l'ensemble des propriétés de la matière en dehors des forces nucléaires, s'appuie sur l'électrodynamique quantique qui repose sur les trois grandeurs de base e , m_e et \hbar respectivement la charge de l'électron, sa masse et la constante réduite de Planck. Ainsi, les grandeurs physiques décrites par l'électrodynamique quantique ne s'exprimeront qu'à l'aide de ces trois paramètres. L'idée fondamentale a été d'associer ces grandeurs fondamentales à l'unité

$$e = m_e = \hbar = 1 \quad (\text{A.1})$$

auxquelles s'associe l'expression en *u.a.* des constantes fondamentales suivantes

$$c = \frac{1}{\alpha} \quad \text{vitesse de la lumière} \quad (\text{A.2})$$

$$\varepsilon_0 = \frac{1}{4\pi} \quad \text{conductivité du vide} \quad (\text{A.3})$$

$$\mu_0 = \frac{4\pi}{c^2} \quad \text{perméabilité du vide} \quad (\text{A.4})$$

où α est la constante de structure fine définie par

Quantité en unités atomiques	Notation	Valeur en unité S.I.
1 <i>u.a.</i> de masse (masse de l'électron)	m_e	$9,10953.10^{-31} \text{ kg}$
1 <i>u.a.</i> de charge (charge de l'électron)	e	$1,60219.10^{-19} \text{ C}$
1 <i>u.a.</i> de longueur (rayon de Bohr)	a_0	$5,29177.10^{-11} \text{ m}$
1 <i>u.a.</i> de vitesse (vitesse de l'électron)	$v_0 = \alpha c$	$2,18769.10^6 \text{ m.s}^{-1}$
1 <i>u.a.</i> d'impulsion	$p_0 = m_e v_0$	$1,99288.10^{-24} \text{ kg.m.s}^{-1}$
1 <i>u.a.</i> de temps	$\tau_0 = \frac{a_0}{v_0}$	$24,1889.10^{-18} \text{ s}$
1 <i>u.a.</i> d'énergie	$\mathcal{E}_0 = m_e c^2 \alpha$	$27,2116 \text{ eV}$
1 <i>u.a.</i> de champ électrique	$E_0 = \frac{e}{a_0}$	$5,14224.10^{11} \text{ V.m}^{-1}$

TAB. A.1 – Correspondance entre les *u.a.* et le S.I.

$$\alpha \simeq \frac{1}{137,036} \quad (\text{A.5})$$

Ainsi, la correspondance entre les unités du système international (S.I.) et les *u.a.* se déduit simplement et est résumée dans le tableau ci-dessus. Une correspondance dont on aura besoin est celle de l'intensité I_0 intervenant dans l'annexe F sur la section efficace, et telle que

$$I_0 = \frac{\varepsilon_0 c}{2} E_0^2 \quad (\text{A.6})$$

Une analyse dimensionnelle utilisant $\varepsilon_0 = 8,854187.10^{-12}$ et $c \simeq 3.10^8 \text{ m.s}^{-1}$ nous mène à la relation¹²

$$I_{0[W.cm^{-2}]} = 3,509338.10^{16} \times E_{0[u.a.]}^2 \quad (\text{A.7})$$

¹²Pour plus de détails sur les constantes, voir <http://physics.nist.gov/cuu/Constants/>

Annexe B

La normalisation du double continuum, le facteur N

L'UTILISATION d'une fonction d'onde symétrisée d'espace pour décrire le double continuum de l'hélium telle que nous l'utilisons nécessite la vérification de la *condition de normalisation* pour tout les instants. Soit, en utilisant nos notations

$$\int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)|^2 = 1 \quad (\text{B.1})$$

Où $\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ est de la forme

$$\begin{aligned} \chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = N & \left[\psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \right] \\ & \times \exp \left[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'})t \right] \mathcal{L}_{\vec{k}\vec{k}'}^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Avec

$$\begin{aligned} \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} \exp \left(\frac{\pi\nu}{2} \right) \Gamma(1 + i\nu) \exp \left(i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \\ \times {}_1F_1(-i\nu; 1; -ikr - i\vec{k} \cdot \vec{r}) \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Or, il faut se souvenir que les fonctions Coulombiennes sont orthormalisées entre elles. Ceci est représenté par la relation

$$\begin{aligned} \int d\vec{r} \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}) &= \delta(\vec{k} - \vec{k}') \\ &= 1 \quad \text{si} \quad \vec{k} = \vec{k}' \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Par ailleurs, la phase de Volkov s'écrit (2.49)

$$\mathcal{L}_{\vec{k}\vec{k}'}^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \exp \left[i\vec{A}(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) - i(\vec{k} + \vec{k}') \cdot \int_{\tau}^t dt' \vec{A}^-(t') \right] \quad (\text{B.5})$$

L'exponentielle complexe sur les énergies et la phase de Volkov de (B.2) n'interviennent pas dans le calcul de la normalisation, donc on peut réécrire (B.1) simplement en fonction des $\psi_{\vec{k}}^-$

$$\int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)|^2 = \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \left| N \left[\psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \right] \right|^2 \quad (\text{B.6})$$

En se souvenant que N est réel, la condition de normalisation pour le membre de droite de l'équation précédente se met sous la forme

$$N^2 \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \left| \left[\psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \right] \right|^2 = \delta^2(\vec{k} - \vec{k}') \quad (\text{B.7})$$

$$= 1 \quad \text{si} \quad \vec{k} = \vec{k}'$$

Intéressons-nous maintenant à la partie intégrale de l'expression précédente dont on réécrit l'intégrand en posant

$$\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \quad (\text{B.8})$$

Il vient, en développant

$$\begin{aligned} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 &= \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] \\ &\quad \times \left[\psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \right] \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

Ce qui nous mène à

$$\begin{aligned} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 &= \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) \right. \\ &\quad + \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \\ &\quad + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \\ &\quad \left. + \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) \right] \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Et on peut remarquer que les variables \vec{r}_1 et \vec{r}_2 sont muettes dans l'intégration. Ceci signifie que le premier et le second terme du membre de droite de l'expression précédente sont identiques dans l'échange \vec{r}_1 avec \vec{r}_2 . Il en va de même pour le troisième terme et le quatrième, ceci nous amène à

$$\begin{aligned} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 &= 2 \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-}(\vec{r}_2) \\ &\quad + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-}(\vec{r}_2) \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

Regardons maintenant le cas particulier où $\vec{k} = \vec{k}'$. Le premier terme de l'équation précédente, que l'on peut qualifier de *direct* et le second de *croisé* sont identiques dans le même échange de variables. Il est donc possible d'écrire

$$\int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 = 4 \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}}^{-}(\vec{r}_2) \quad (\text{B.12})$$

Ainsi, en vertu de la normalisation des fonctions d'onde coulombiennes (B.4) l'intégrale du membre de droite de (B.12) se résume à l'unité, il vient donc

$$\int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 = 4 \quad (\text{B.13})$$

Par conséquent, en injectant ce dernier résultat dans (B.7), il vient

$$4N^2 = 1 \quad (\text{B.14})$$

Soit

$$N = \frac{1}{2} \quad (\text{B.15})$$

Il s'agit à présent de déterminer la valeur de N pour $\vec{k} \neq \vec{k}'$. Dans ce cas, du fait de l'orthonormalisation des fonctions d'onde Coulombiennes, la contribution du terme croisé sera finie et négligeable par rapport à la contribution infinie du terme direct (distribution de Dirac). Cet argument nous permet de réécrire (B.11) sous la forme

$$\int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 |\phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 = 2\delta^2(\vec{k} - \vec{k}') \quad (\text{B.16})$$

Encore une fois, en injectant ce résultat dans (B.7) nous arrivons à

$$2N^2\delta^2(\vec{k} - \vec{k}') = \delta^2(\vec{k} - \vec{k}') \quad (\text{B.17})$$

Ce qui nous donne

$$N = \frac{1}{\sqrt{2}} \quad (\text{B.18})$$

En résumé, suivant les cas étudiés, la valeur de N peut être

$$\begin{cases} N = \frac{1}{2} & \text{si } \vec{k} = \vec{k}' \\ N = \frac{1}{\sqrt{2}} & \text{si } \vec{k} \neq \vec{k}' \end{cases} \quad (\text{B.19})$$

Annexe C

L'intégrale $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ et ses limites

C.1 Calcul de l'intégrale $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$

IL s'agit ici de calculer l'intégrale $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ définie de manière générale comme il suit

$$\tilde{J}_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) \exp\left(i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}\right) \varphi_{1s}(\vec{r}) \quad (\text{C.1})$$

Les fonctions d'onde normalisées de façon habituelle intervenant dans ce calcul sont bien connues et s'expriment ainsi

$$\begin{aligned} \varphi_{1s}(\vec{r}) &= \frac{Z_i^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}} \exp(-Z_i r) \\ \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}) &= (2\pi)^{-\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 + i\nu) \exp\left(i\vec{k} \cdot \vec{r}\right) \\ &\quad \times {}_1F_1\left(-i\nu; 1; -ikr - i\vec{k} \cdot \vec{r}\right) \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

En regroupant les termes dépendant de \vec{r} et ceux qui n'en dépendent pas, il vient

$$\begin{aligned} \tilde{J}_{\vec{k}}(t) &= (2\pi)^{-\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \frac{Z_i^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}} \\ &\quad \times \int d\vec{r} \exp\left[-i\left(\vec{k} + \vec{A}^-(t)\right) \cdot \vec{r} - Z_i r\right] {}_1F_1\left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r}\right) \end{aligned} \quad (\text{C.3})$$

Le coefficient devant l'intégrale se simplifie

$$C_{\tilde{J}} = \left(\frac{Z_i}{2}\right)^{\frac{3}{2}} \frac{\exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right)}{\pi^2} \Gamma(1 - i\nu) \quad (\text{C.4})$$

Intéressons-nous maintenant au calcul de l'intégrale proprement dite que nous appellerons $J_{\vec{k}}(t)$

$$J_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \exp \left[-i \left(\vec{k} + \vec{A}^-(t) \right) \cdot \vec{r} - Z_i r \right] {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{C.5})$$

Ce type d'intégrales est connu et calculé par A. Nordsieck [216]. C'est ce que nous allons utiliser dans ce qui suit. Pour cela, posons $\vec{\kappa} = \vec{k} + \vec{A}^-(t)$ ce qui nous amène à

$$J_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} - Z_i r \right) {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{C.6})$$

Nous pouvons réécrire cette expression comme il suit en utilisant la convergence uniforme sur Z_i

$$J_{\vec{k}}(t) = -\frac{\partial}{\partial Z_i} \int d\vec{r} \frac{\exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} - Z_i r \right)}{r} {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{C.7})$$

La partie intégrale de l'expression précédente est connue [216]

$$\begin{aligned} \int d\vec{r} \frac{\exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} - Z_i r \right)}{r} {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \\ = \frac{4\pi}{\kappa^2 + Z_i^2} \left[1 - \frac{2 \left(\vec{\kappa} \cdot \vec{k} + i\kappa Z_i \right)}{\kappa^2 + Z_i^2} \right]^{-i\nu} \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

Le membre de gauche de (C.8) se met sous la forme

$$\begin{aligned} \frac{4\pi}{\kappa^2 + Z_i^2} \left[1 - \frac{2 \left(\vec{\kappa} \cdot \vec{k} + i\kappa Z_i \right)}{\kappa^2 + Z_i^2} \right]^{-i\nu} \\ = 4\pi \left(\kappa^2 + Z_i^2 \right)^{i\nu-1} \left[\kappa^2 + Z_i^2 - 2(\vec{\kappa} \cdot \vec{k} + i\kappa Z_i) \right]^{-i\nu} \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

Pour simplifier les notations, posons

$$\begin{cases} \mathcal{B} = \kappa^2 + Z_i^2 \\ \mathcal{H} = \mathcal{B} - 2(\vec{\kappa} \cdot \vec{k} + ikZ_i) \end{cases} \quad (\text{C.10})$$

En utilisant ces définitions dans (C.9) puis le tout dans (C.7) nous parvenons à

$$J_{\vec{k}}(t) = 4\pi \left(-\frac{\partial}{\partial Z_i} \right) (\mathcal{B}^{i\nu-1} \mathcal{H}^{-i\nu}) \quad (\text{C.11})$$

Intéressons-nous aux dérivées de \mathcal{B} et \mathcal{H} par rapport à Z_i

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial Z_i} \mathcal{B} = 2Z_i \\ \frac{\partial}{\partial Z_i} \mathcal{H} = 2Z_i - 2ik = 2(Z_i - ik) \end{cases} \quad (\text{C.12})$$

En vertu de ce qui précède, il est possible d'écrire

$$\begin{aligned} & -\frac{\partial}{\partial Z_i} (\mathcal{B}^{i\nu-1} \mathcal{H}^{-i\nu}) \\ &= -(i\nu - 1) \mathcal{B}^{i\nu-2} 2Z_i \mathcal{H}^{-i\nu} - \mathcal{B}^{i\nu-1} (-i\nu) \mathcal{H}^{-i\nu-1} 2(Z_i - ik) \\ &= 2\mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \end{aligned} \quad (\text{C.13})$$

En substituant cette dernière expression dans (C.11) nous arrivons à

$$J_{\vec{k}}(t) = 8\pi \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \quad (\text{C.14})$$

D'après (C.3), (C.4) et (C.14), l'expression de $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ devient

$$\begin{aligned} \tilde{J}_{\vec{k}}(t) &= \left(\frac{Z_i}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{8}{\pi} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \\ &\quad \times \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \end{aligned} \quad (\text{C.15})$$

C.2 Limite de $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$ en $k = 0$

Afin d'étudier le comportement de cette limite, la démarche que nous allons adopter est de regarder séparément les limites de $\mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1}$ puis celle du terme entre crochets. Regardons préalablement les limites de \mathcal{B} et \mathcal{H} qui seront utiles plus tard

$$\begin{cases} \lim_{k \rightarrow 0} \mathcal{B} = A^{-2}(t) + Z_i^2 \\ \lim_{k \rightarrow 0} \mathcal{H} = A^{-2}(t) + Z_i^2 \end{cases} \quad (\text{C.16})$$

Ensuite, réécrivons le facteur $\mathcal{B}^{i\nu-2}\mathcal{H}^{-i\nu-1}$ sous une forme plus facile à étudier

$$\mathcal{B}^{i\nu-2}\mathcal{H}^{-i\nu-1} = \mathcal{B}^{-2}\mathcal{H}^{-1} \left(\frac{\mathcal{B}}{\mathcal{H}} \right)^{i\nu} \quad (\text{C.17})$$

Dans l'expression précédente, la limite de $\left(\frac{\mathcal{B}}{\mathcal{H}} \right)^{i\nu}$ nous est inconnue. Intéressons nous à ce facteur, et utilisons la forme exponentielle d'un nombre complexe $\rho \exp(i\varphi)$

$$\left(\frac{\mathcal{B}}{\mathcal{H}} \right)^{i\nu} = \left(\frac{\mathcal{H}}{\mathcal{B}} \right)^{-i\nu} = (\rho \exp(i\varphi))^{-i\nu} = \exp(-i\nu \ln \rho) \exp(\varphi\nu) \quad (\text{C.18})$$

Ceci va nous permettre d'étudier séparément les limites de chacune des exponentielles de (C.18). Commençons par la seconde et par l'argument φ

$$\varphi = \arctan \left(\frac{-2Z_i k}{Z_i^2 + A^{-2}(t) - k^2} \right) \quad (\text{C.19})$$

Or le développement limité de l'arctan est

$$\arctan x = x - \frac{x^3}{3} + \frac{x^5}{5} - \dots + \frac{(-1)^n x^{2n+1}}{2n+1} + \dots + \Theta(x^p) \quad (\text{C.20})$$

En utilisant le développement limité précédent dans le cas qui nous intéresse il vient

$$\begin{aligned} \varphi\nu &= \nu \arctan \left(\frac{-2Z_i k}{Z_i^2 + A^{-2} - k^2} \right) \\ &= \nu \frac{-2Z_i k}{Z_i^2 + A^{-2}(t) - k^2} \left[1 - \frac{1}{3} \left(\frac{-2Z_i k}{Z_i^2 + A^{-2}(t) - k^2} \right)^2 + \Theta(k^5) \right] \end{aligned} \quad (\text{C.21})$$

Ainsi, le premier terme non nul de la limite de $\exp(\varphi\nu)$ au voisinage de $k = 0$ en utilisant $\nu = \frac{Z_k}{k}$ est

$$\lim_{k \rightarrow 0} \exp(\varphi\nu) = \exp \left(-\frac{2Z_i Z_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \right) \quad (\text{C.22})$$

Par ailleurs, pour exprimer la limite de la première exponentielle de (C.18) il est nécessaire d'écrire ρ qui est fonction de \mathcal{B} et \mathcal{H} . Exprimons ces derniers sous une forme plus maniable

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{B} = \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \left[1 + \frac{2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t)}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} + \frac{k^2}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \right] \\ \quad = \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \tilde{\mathcal{B}} \\ \mathcal{H} = \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \left[1 - \frac{2ikZ_i}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} - \frac{k^2}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \right] \\ \quad = \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \tilde{\mathcal{H}} \end{array} \right. \quad (\text{C.23})$$

Or

$$\rho = \left| \frac{\mathcal{H}}{\mathcal{B}} \right| = \left| \frac{\tilde{\mathcal{H}}}{\tilde{\mathcal{B}}} \right| = \frac{|\tilde{\mathcal{H}}|}{|\tilde{\mathcal{B}}|} \quad (\text{C.24})$$

Ce qui nous amène à considérer les développements de $|\tilde{\mathcal{H}}|$ et $|\tilde{\mathcal{B}}|$. Commençons par celui de $|\tilde{\mathcal{H}}|$ et posons $\delta = Z_i^2 + A^{-2}(t)$

$$|\tilde{\mathcal{H}}| = \left[\left| 1 - \frac{k^2}{\delta} \right|^{1/2} + \frac{4k^2 Z_i^2}{\delta} \right]^{1/2} = \left[1 - \frac{2k^2}{\delta} + \frac{k^4}{\delta^2} + \frac{4k^2 Z_i^2}{\delta} \right]^{1/2} \quad (\text{C.25})$$

Développons jusqu'au second ordre l'expression précédente en suivant le développement limité bien connu

$$(1+x)^n = 1 + nx + n(n-1)\frac{x^2}{2!} + \Theta(x^3) \text{ pour } |x| \ll 1 \quad (\text{C.26})$$

Il vient

$$\begin{aligned} |\tilde{\mathcal{H}}| &= 1 - \frac{k^2}{\delta} \left(1 - \frac{2Z_i^2}{\delta} - \frac{k^2}{2\delta} \right) \\ &\quad - \frac{k^4}{8\delta^2} \left[4 - \frac{16Z_i^2}{\delta} + \frac{16Z_i^4}{\delta^2} + \frac{k^4}{\delta^2} - \frac{2k^2}{\delta} \left(2 - \frac{4Z_i}{\delta} \right) \right] \\ &\quad + \Theta(k^6) \\ &= 1 + \frac{k^2}{\delta^2} \left(Z_i^2 - A^{-2}(t) \right) + \frac{2Z_i^2 A^{-2}(t) k^4}{\delta^4} + \Theta(k^6) \end{aligned} \quad (\text{C.27})$$

Utilisons la même démarche pour calculer le développement de $|\tilde{\mathcal{B}}|^{-1}$

$$|\tilde{\mathcal{B}}|^{-1} = \tilde{\mathcal{B}}^{-1} = \left(1 + \frac{2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t) + k^2}{\delta} \right)^{-1} \quad (\text{C.28})$$

A l'aide du même développement limité, il vient

$$\begin{aligned} |\tilde{\mathcal{B}}|^{-1} &= 1 - \frac{2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t) + k^2}{\delta} + \left(\frac{2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t) + k^2}{\delta} \right)^2 + \left(\frac{2\vec{k} \cdot \vec{A}^-(t) + k^2}{\delta} \right)^3 \\ &\quad + \Theta(k^4) \\ &= 1 - \frac{2\vec{k} \cdot \vec{A}(t)}{\delta} - \frac{k^2}{\delta} \left(1 - \frac{4A^{-2}(t) \cos^2 \theta_k}{\delta} \right) + \frac{4k^3 \cos \theta_k}{\delta^2} (1 - 2 \cos^2 \theta_k) \\ &\quad + \Theta(k^4) \end{aligned} \quad (\text{C.29})$$

A l'aide des deux expressions (C.27) et (C.29), (C.24) se met sous la forme

$$\begin{aligned} \rho &= \left[1 + \frac{k^2}{\delta^2} \left(Z_i^2 - A^{-2}(t) \right) + \frac{2Z_i^2 A^{-2}(t) k^4}{\delta^4} + \Theta(k^6) \right] \\ &\quad \times \left[1 - \frac{2k A_z^-(t) \cos \theta_k}{\delta} - \frac{k^2}{\delta} \left(1 - \frac{4A^{-2}(t) \cos^2 \theta_k}{\delta} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{4k^3 \cos \theta_k}{\delta^2} (1 - 2 \cos^2 \theta_k) + \Theta(k^4) \right] \end{aligned} \quad (\text{C.30})$$

En développant les termes entre crochets, en ne retenant que les termes du second ordre puis en remplaçant δ par son expression ; il vient

$$\begin{aligned} \rho &\simeq 1 - \frac{2k A_z^-(t) \cos \theta_k}{\delta} + \frac{k^2}{\delta^2} \left[Z_i^2 - A^{-2}(t) - \delta + 4A^{-2}(t) \cos^2 \theta_k \right] \\ &\simeq 1 - \frac{2k A_z^-(t) \cos \theta_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} - \frac{2k^2}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} (1 - 2 \cos^2 \theta_k) \end{aligned} \quad (\text{C.31})$$

Ainsi, on peut exprimer la limite de ρ au voisinage de $k = 0$ en s'aidant du développement limité du logarithme népérien au premier ordre $\ln(1+x) = x + \Theta(x^2)$ pour $x \ll 1$

$$\lim_{k \rightarrow 0} \ln \rho = - \frac{2k A_z^-(t) \cos \theta_k}{Z_i^2 + A_z^{-2}(t)} \quad (\text{C.32})$$

Dans cette expression, on a retenu uniquement le terme d'ordre 1 car après multiplication par $-i\nu$, il est le seul à avoir une limite non nulle. On a donc

$$\lim_{k \rightarrow 0} -i\nu \ln \rho = i \frac{2A_z^-(t)Z_k \cos \theta_k}{Z_i^2 + A_z^{-2}(t)} \quad (\text{C.33})$$

En réunissant la limite précédente et celle exprimée en (C.22), cela nous mène à

$$\lim_{k \rightarrow 0} \left(\frac{\mathcal{B}}{\mathcal{H}} \right)^{i\nu} = \exp \left(-\frac{2Z_i Z_k}{Z_i^2 + A_z^{-2}(t)} + i \frac{2A_z^-(t)Z_k \cos \theta_k}{Z_i^2 + A_z^{-2}(t)} \right) \quad (\text{C.34})$$

On peut finalement écrire la limite de (C.17) en vertu de (C.16)

$$\begin{aligned} \lim_{k \rightarrow 0} \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} &= \lim_{k \rightarrow 0} \mathcal{B}^{-2} \mathcal{H}^{-1} \left(\frac{\mathcal{B}}{\mathcal{H}} \right)^{i\nu} \\ &= \frac{\exp \left(-\frac{2Z_i Z_k}{Z_i^2 + A_z^{-2}(t)} + i \frac{2A_z^-(t)Z_k \cos \theta_k}{Z_i^2 + A_z^{-2}(t)} \right)}{(Z_i^2 + A_z^{-2}(t))^3} \end{aligned} \quad (\text{C.35})$$

Il nous faut maintenant étudier le comportement du terme facteur entre crochets de (C.15). Cependant la présence de facteurs ν impose un développement à l'ordre 1 (en k) des facteurs \mathcal{H} et \mathcal{B} . Commençons par les réécrire à partir de (C.23)

$$\begin{cases} \mathcal{B} = \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) (1 + \beta k + \gamma k^2) \\ \mathcal{H} = \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) (1 - \alpha k - \gamma k^2) \end{cases} \quad (\text{C.36})$$

Où l'on définit les quantités suivantes

$$\begin{cases} \alpha = \frac{2iZ_i}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \\ \beta = \frac{2A_z^-(t) \cos \theta_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \\ \gamma = \frac{1}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \end{cases} \quad (\text{C.37})$$

Nous pouvons maintenant évaluer le terme entre crochets de (C.15) en utilisant les expressions (C.36)

$$\begin{aligned}
& Z_i(1 - i\nu)\mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik)\mathcal{B} \\
&= \left[Z_i(1 - i\nu)(1 - \alpha k - \gamma k^2) + i\nu(Z_i - ik)(1 + \beta k + \gamma k^2) \right] \\
&\quad \times \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \\
&= \left[Z_i(1 - \alpha k - \gamma k^2 - i\nu + i\alpha Z_k + i\gamma Z_k k) \right. \\
&\quad \left. + (Z_i - ik)(i\nu + i\beta Z_k + i\gamma Z_k k) \right] \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \\
&= \left[Z_i - \alpha Z_i k - \gamma Z_i k^2 - iZ_i \nu + i\alpha Z_i Z_k + i\gamma Z_i Z_k k + iZ_i \nu \right. \\
&\quad \left. + i\beta Z_i Z_k + Z_k + k\beta Z_k + i\gamma Z_i Z_k \right] \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \\
&= \left[-\gamma Z_i k^2 + k(\beta Z_k - \alpha Z_i + 2i\gamma Z_i Z_k) + iZ_i Z_k(\alpha + \beta) \right. \\
&\quad \left. + Z_i + Z_k \right] \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \tag{C.38}
\end{aligned}$$

Puis sa limite au voisinage de $k = 0$

$$\begin{aligned}
& \lim_{k \rightarrow 0} Z_i(1 - i\nu)\mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik)\mathcal{B} \\
&= \left[iZ_i Z_k(\alpha + \beta) + Z_i + Z_k \right] \left(Z_i^2 + A^{-2}(t) \right) \tag{C.39}
\end{aligned}$$

Au final en utilisant (C.37) cette limite devient

$$\begin{aligned}
& \lim_{k \rightarrow 0} Z_i(1 - i\nu)\mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik)\mathcal{B} \\
&= 2iZ_i Z_k(iZ_i + A_z^-(t) \cos \theta_k) + (Z_i + Z_k)(Z_i^2 + A^{-2}(t)) \tag{C.40}
\end{aligned}$$

Ainsi en rassemblant tout ce qui vient d'être fait c'est-à-dire (C.40) et (C.35), nous pouvons écrire la limite de $\tilde{J}_{\vec{k}}(t)$

$$\begin{aligned}
\lim_{k \rightarrow 0} \tilde{J}_{\vec{k}}(t) &= \left(\frac{Z_i}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{8}{\pi} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \frac{\exp\left(-\frac{2Z_i Z_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} + i\frac{2A_z^-(t) Z_k \cos \theta_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)}\right)}{(Z_i^2 + A^{-2}(t))^3} \\
&\quad \times \left[2iZ_i Z_k(iZ_i + A_z^-(t) \cos \theta_k) + (Z_i + Z_k)(Z_i^2 + A^{-2}(t)) \right] \tag{C.41}
\end{aligned}$$

En dernier point, si on garde le terme de premier degré dans (C.38) pour une meilleure continuité quand $k \rightarrow 0$ celui-ci s'écrit en utilisant les définitions (C.37)

$$k(\beta Z_k - \alpha Z_i + 2i\gamma Z_i Z_k) = 2k \left[Z_k A_z^-(t) \cos \theta_k + i Z_i (Z_k - Z_i) \right] \quad (\text{C.42})$$

Annexe **D**

L'intégrale $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ et ses limites

D.1 Calcul de l'intégrale $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$

IL s'agit ici de calculer l'intégrale $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ définie de manière générale comme suit

$$\tilde{I}_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) \exp\left(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}\right) r \cos \theta \varphi_{1s}(\vec{r}) \quad (\text{D.1})$$

Les fonctions d'onde intervenant dans ce calcul sont identiques à celles de l'annexe précédente (cf. eq. (C.2)). En utilisant ces définitions dans (D.1), puis en regroupant les termes dépendant de \vec{r} et ceux qui n'en dépendent pas, il vient

$$\begin{aligned} \tilde{I}_{\vec{k}}(t) &= (2\pi)^{-\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \frac{Z_i^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}} \\ &\quad \times \int d\vec{r} \exp\left[-i\left(\vec{k} + \vec{A}^-(t)\right) \cdot \vec{r} - Z_i r\right] r \cos \theta \\ &\quad \times {}_1F_1\left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r}\right) \end{aligned} \quad (\text{D.2})$$

Le coefficient devant l'intégrale se simplifie :

$$C_{\tilde{I}} = \left(\frac{Z_i}{2}\right)^{\frac{3}{2}} \frac{\exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right)}{\pi^2} \Gamma(1 - i\nu) \quad (\text{D.3})$$

Intéressons-nous maintenant au calcul de l'intégrale proprement dite que nous appellerons $I_{\vec{k}}(t)$

$$I_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \exp \left[-i \left(\vec{k} + \vec{A}^-(t) \right) \cdot \vec{r} - Z_i r \right] r \cos \theta_1 F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{D.4})$$

Comme nous l'avons souligné dans l'annexe précédente, ce type d'intégrales est connu et calculé par Nordsieck [216] et nous allons encore utiliser le résultat dans ce qui suit. Pour cela, posons $\vec{\kappa} = \vec{k} + \vec{A}^-(t)$ ce qui nous amène à

$$I_{\vec{k}}(t) = \int d\vec{r} \exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} - Z_i r \right) r \cos \theta_1 F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{D.5})$$

Par ailleurs, si nous développons le produit scalaire $\vec{\kappa} \cdot \vec{r}$ comme il suit

$$\vec{\kappa} \cdot \vec{r} = \kappa_x r \sin \theta \cos \phi + \kappa_y r \sin \theta \sin \phi + \kappa_z r \cos \theta \quad (\text{D.6})$$

Nous pouvons alors explicitement écrire

$$i \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} \right) = r \cos \theta \exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{D.7})$$

En utilisant cette expression pour transformer (D.5) et grâce à la convergence uniforme sur κ_z , il vient

$$I_{\vec{k}}(t) = i \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \int d\vec{r} \exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} - Z_i r \right) r \cos \theta_1 F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{D.8})$$

Nous pouvons réécrire cette expression comme il suit en utilisant la convergence uniforme sur Z_i

$$I_{\vec{k}}(t) = i \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \left(-\frac{\partial}{\partial Z_i} \right) \int d\vec{r} \frac{\exp \left(-i\vec{\kappa} \cdot \vec{r} - Z_i r \right)}{r} {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr + i\vec{k} \cdot \vec{r} \right) \quad (\text{D.9})$$

Ce qui revient à dériver par rapport à κ_z l'expression de $J_{\vec{k}}(t)$ exprimée dans l'annexe C précédente (C.7)

$$I_{\vec{k}}(t) = i \frac{\partial}{\partial \kappa_z} J_{\vec{k}}(t) \quad (\text{D.10})$$

En remplaçant l'expression de $J_{\vec{k}}(t)$ par (C.7) réécrivons l'équation précédente plus en détail

$$I_{\vec{k}}(t) = 8i\pi \left(\frac{\partial}{\partial \kappa_z} \right) \left\{ \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \right\} \quad (\text{D.11})$$

Intéressons-nous préalablement aux dérivées de \mathcal{B} et \mathcal{H} par rapport à κ_z

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \mathcal{B} = 2\kappa_z \\ \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \mathcal{H} = 2\kappa_z - 2k_z = 2(k_z + A_z^-(t)) - 2k_z = 2A_z^-(t) \end{cases} \quad (\text{D.12})$$

A l'aide de ces expressions, calculons séparément les dérivées de chacun des facteurs de (D.11). Dans un premier temps

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} &= (i\nu - 2) \mathcal{B}^{i\nu-3} 2\kappa_z \mathcal{H}^{-i\nu-1} - (i\nu + 1) \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-2} 2A_z^-(t) \\ &= 2\mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[\kappa_z(i\nu - 2) \mathcal{B}^{-1} - A_z^-(t)(i\nu + 1) \mathcal{H}^{-1} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.13})$$

Ensuite calculons la dérivée du terme entre crochets

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \kappa_z} \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] &= Z_i(1 - i\nu) 2A_z^- + i\nu(Z_i - ik) 2\kappa_z \\ &= 2Z_i(1 - i\nu) A_z^- + 2i\nu(Z_i - ik) \kappa_z \end{aligned} \quad (\text{D.14})$$

L'expression à dériver dans (D.11) s'écrit

$$\begin{aligned} &\left(\frac{\partial}{\partial \kappa_z} \right) \left\{ \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \right\} \\ &= \left(\frac{\partial}{\partial \kappa_z} \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \right) \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \\ &\quad + \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left(\frac{\partial}{\partial \kappa_z} \right) \left[Z_i(1 - i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.15})$$

En utilisant les expressions des dérivées (D.13) et (D.14) il vient

$$\begin{aligned}
& \left(\frac{\partial}{\partial \kappa_z} \right) \left\{ \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[Z_i(1-i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \right\} \\
&= 2\mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[\kappa_z(i\nu-2) \mathcal{B}^{-1} - A_z^-(t)(i\nu+1) \mathcal{H}^{-1} \right] \\
&\quad \times \left[Z_i(1-i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \\
&\quad + \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[2Z_i(1-i\nu) A_z^-(t) + 2i\nu(Z_i - ik) \kappa_z \right]
\end{aligned} \tag{D.16}$$

Puis en regroupant

$$\begin{aligned}
& \left(\frac{\partial}{\partial \kappa_z} \right) \left\{ \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left[Z_i(1-i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \right\} \\
&= 2\mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left\{ \left[\kappa_z(i\nu-2) \mathcal{B}^{-1} - A_z^-(t)(i\nu+1) \mathcal{H}^{-1} \right] \right. \\
&\quad \times \left[Z_i(1-i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] + Z_i(1-i\nu) A_z^-(t) \\
&\quad \left. + i\nu(Z_i - ik) \kappa_z \right\}
\end{aligned} \tag{D.17}$$

Il est maintenant nécessaire de développer les crochets de l'expression précédente

$$\begin{aligned}
& \left[\kappa_z(i\nu-2) \mathcal{B}^{-1} - A_z^-(t)(i\nu+1) \mathcal{H}^{-1} \right] \left[Z_i(1-i\nu) \mathcal{H} + i\nu(Z_i - ik) \mathcal{B} \right] \\
&= Z_i \kappa_z (1-i\nu)(i\nu-2) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} + i\nu \kappa_z (Z_i - ik)(i\nu-2) \\
&\quad - A_z^-(t) Z_i (i\nu+1)(1-i\nu) - i\nu A_z^-(t)(i\nu+1)(Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} \\
&= -Z_i \kappa_z (1-i\nu)(2-i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} - i\nu \kappa_z (Z_i - ik)(2-i\nu) \\
&\quad - A_z^-(t) Z_i (1+i\nu)(1-i\nu) - i\nu A_z^-(t)(1+i\nu)(Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1}
\end{aligned} \tag{D.18}$$

Ceci nous permet de réécrire l'expression entre accolades de (D.17)

$$\begin{aligned}
 \left\{ \dots \right\} &= -Z_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} - i\nu A_z^-(t) (1 + i\nu) (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} \\
 &\quad + i\nu \kappa_z (Z_i - ik) \left[1 - (2 - i\nu) \right] + Z_i A_z^-(t) (1 - i\nu) \left[1 - (1 + i\nu) \right] \\
 &= -Z_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} - i\nu A_z^-(t) (1 + i\nu) (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} \\
 &\quad - i\nu \kappa_z (Z_i - ik) (1 - i\nu) - i\nu Z_i A_z^-(t) (1 - i\nu) \\
 &= -Z_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} - i\nu A_z^-(t) (1 + i\nu) (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} \\
 &\quad - i\nu (1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^-(t) \right] \tag{D.19}
 \end{aligned}$$

Ensuite, de l'expression (D.11), en vertu de ce qui précède et de (D.17) il vient

$$\begin{aligned}
 I_{\vec{k}}(t) &= 16\pi \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \left\{ -iZ_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} \right. \\
 &\quad \left. + \nu A_z^-(t) (1 + i\nu) (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} \right. \\
 &\quad \left. + \nu (1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^-(t) \right] \right\} \tag{D.20}
 \end{aligned}$$

Au final, en injectant cette expression dans (D.2) et en tenant compte de (D.3) nous pouvons exprimer $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$

$$\begin{aligned}
 \tilde{I}_{\vec{k}}(t) &= \left(\frac{Z_i}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{16}{\pi} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1} \\
 &\quad \times \left\{ -iZ_i \kappa_z (1 - i\nu)(2 - i\nu) \mathcal{H} \mathcal{B}^{-1} + \nu A_z^-(t) (1 + i\nu) \right. \\
 &\quad \left. \times (Z_i - ik) \mathcal{B} \mathcal{H}^{-1} + \nu (1 - i\nu) \left[\kappa_z (Z_i - ik) + Z_i A_z^-(t) \right] \right\} \tag{D.21}
 \end{aligned}$$

D.2 Limite de $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ en $k = 0$

Dans l'annexe C précédente, nous avons déjà calculé la limite du facteur $\mathcal{B}^{i\nu-2} \mathcal{H}^{-i\nu-1}$, intéressons-nous au facteur entre parenthèses de (D.20) que nous appellerons \mathcal{Q}_I

$$\begin{aligned} \mathcal{Q}_I = & -iZ_i\kappa_z(1-i\nu)(2-i\nu)\mathcal{H}\mathcal{B}^{-1} + \nu A_z^-(t)(1+i\nu)(Z_i-ik)\mathcal{B}\mathcal{H}^{-1} \\ & + \nu(1-i\nu)\left[\kappa_z(Z_i-ik) + Z_i A_z^-(t)\right] \quad (\text{D.22}) \end{aligned}$$

La présence de ν et ν^2 imposent de développer à l'ordre 2 les expressions de $\mathcal{H}\mathcal{B}^{-1}$ et $\mathcal{B}\mathcal{H}^{-1}$. Dans un premier temps, mettons k^{-2} en facteur général

$$\begin{aligned} \mathcal{Q}_I = & -iZ_i\kappa_z(-\nu^2 - 3i\nu + 2)\mathcal{H}\mathcal{B}^{-1} + A_z^-(t)(\nu + i\nu^2)(Z_i-ik)\mathcal{B}\mathcal{H}^{-1} \\ & + (\nu - i\nu^2)\left[\kappa_z(Z_i-ik) + Z_i A_z^-(t)\right] \\ = & \frac{1}{k^2}\left\{ -iZ_i\kappa_z(-Z_k^2 - 3iZ_k k + 2k^2)\mathcal{H}\mathcal{B}^{-1} \right. \\ & + A_z^-(t)(Z_k k + iZ_k^2)(Z_i-ik)\mathcal{B}\mathcal{H}^{-1} + (Z_k k - iZ_k^2) \\ & \left. \times \left[\kappa_z(Z_i-ik) + Z_i A_z^-(t)\right] \right\} \quad (\text{D.23}) \end{aligned}$$

Par ailleurs, développons le rapport $\mathcal{H}\mathcal{B}^{-1}$

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{H}}{\mathcal{B}} = & \frac{\mathcal{B} - 2(\vec{\kappa} \cdot \vec{k} + ikZ_i)}{\mathcal{B}} \\ = & \frac{k^2 + A^{-2}(t) + 2kA_z^-(t)\cos\theta_k + Z_i^2 - 2(\vec{\kappa} \cdot \vec{k} + ikZ_i)}{k^2 + A^{-2}(t) + 2kA_z^-(t)\cos\theta_k + Z_i^2} \\ = & \frac{k^2 + A^{-2}(t) + 2kA^-(t)\cos\theta_k + Z_i^2 - 2(k^2 + kA^-(t)\cos\theta_k + ikZ_i)}{k^2 + A^{-2}(t) + 2kA^-(t)\cos\theta_k + Z_i^2} \\ = & \frac{A^{-2}(t) + Z_i^2 - k^2 - 2ikZ_i}{A^2(t) + Z_i^2 + k^2 + 2kA^-(t)\cos\theta_k} \\ = & \frac{1 - \frac{k^2 + 2ikZ_i}{A^{-2}(t) + Z_i^2}}{1 + \frac{k^2 + 2kA^-(t)\cos\theta_k}{A^{-2}(t) + Z_i^2}} \\ = & \frac{1 - \alpha k - \gamma k^2}{1 + \beta k + \gamma k^2} \quad (\text{D.24}) \end{aligned}$$

Où l'on définit les quantités suivantes

$$\begin{cases} \alpha = \frac{2iZ_i}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \\ \beta = \frac{2A_z^-(t) \cos \theta_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \\ \gamma = \frac{1}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} \end{cases} \quad (\text{D.25})$$

Si l'on poursuit le développement

$$\frac{\mathcal{H}}{\mathcal{B}} = (1 - \alpha k - \gamma k^2)(1 + \beta k + \gamma k^2)^{-1} \quad (\text{D.26})$$

En utilisant le développement limité

$$(1 + x)^n = 1 + nx + n(n-1)\frac{x^2}{2!} + \Theta(x^3) \text{ pour } |x| \ll 1 \quad (\text{D.27})$$

Il vient donc

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{H}}{\mathcal{B}} &= (1 - \alpha k - \gamma k^2)(1 - (\beta k + \gamma k^2) + (\beta k + \gamma k^2)^2 + \Theta(k^3)) \\ &= (1 - \alpha k - \gamma k^2)(1 - \beta k - \gamma k^2 + \beta^2 k^2 + \gamma^2 k^4 + 2\beta\gamma k^3 \\ &\quad + \Theta(k^3)) \\ &= (1 - \alpha k - \gamma k^2)(1 - \beta k - (\gamma - \beta^2)k^2 + \Theta(k^3)) \\ &= 1 - \beta k - (\gamma - \beta^2)k^2 - \alpha k + \alpha\beta k^2 - \gamma k^2 + \Theta(k^3) \\ &= 1 - (\alpha + \beta)k - (\gamma - \beta^2 - \alpha\beta + \gamma)k^2 + \Theta(k^3) \\ &= 1 - (\alpha + \beta)k - (2\gamma - \alpha\beta - \beta^2) + \Theta(k^3) \end{aligned} \quad (\text{D.28})$$

Suivons la même démarche pour calculer le développement de $\mathcal{B}\mathcal{H}^{-1}$

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{B}}{\mathcal{H}} &= \frac{1 + \beta k + \gamma k^2}{1 - \alpha k - \gamma k^2} = (1 + \beta k + \gamma k^2)(1 - \alpha k - \gamma k^2)^{-1} \\ &= (1 + \beta k + \gamma k^2)(1 + (\alpha k + \gamma k^2) + (\alpha k + \gamma k^2)^2 + \Theta(k^3)) \\ &= (1 + \beta k + \gamma k^2)(1 + \alpha k + \gamma k^2 + \alpha^2 k^2 + \Theta(k^3)) \\ &= (1 + \beta k + \gamma k^2)(1 + \alpha k(\gamma + \alpha^2)k^2 + \Theta(k^3)) \\ &= 1 + \alpha k + (\gamma + \alpha^2)k^2 + \beta k + \alpha\beta k^2 + \gamma k^2 + \Theta(k^3) \\ &= 1 + (\alpha + \beta)k + (2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta)k^2 + \Theta(k^3) \end{aligned} \quad (\text{D.29})$$

Utilisons les développements de $\mathcal{H}\mathcal{B}^{-1}$ et $\mathcal{B}\mathcal{H}^{-1}$ pour calculer les trois termes du crochet de (D.23) que l'on va nommer respectivement q_1 , q_2 et q_3 . La

présence du facteur k^{-2} nous mène à ne retenir que les termes d'ordre 2 dans chacun des développements suivants

$$\begin{aligned}
q_1 &= -i\kappa_z Z_i (-Z_k^2 - 3iZ_k k + 2k^2) \left[1 - (\alpha + \beta)k - (2\alpha - \alpha\beta - \beta^2)k^2 \right] \\
&= -i\kappa_z Z_i \left[-Z_k^2 + Z_k^2(\alpha + \beta)k + Z_k^2(2\gamma - \alpha\beta - \beta^2)k^2 - 3ikZ_k \right. \\
&\quad \left. + 3ik^2 Z_k(\alpha + \beta) + 2k^2 \right] \\
&= -i\kappa_z Z_i \left\{ -Z_k^2 + \left[Z_k^2(\alpha + \beta) - 3iZ_k + \Theta(k^3) \right] k \right. \\
&\quad \left. + \left[Z_k^2(2\gamma - \alpha\beta - \beta^2) + 3iZ_k(\alpha + \beta) + 2 \right] k^2 \right\} \\
&= -iZ_i (k \cos \theta_k + A_z^-(t)) \left\{ -Z_k^2 + \left[Z_k^2(\alpha + \beta) - 3iZ_k \right] \right. \\
&\quad \left. + \left[Z_k^2(2\gamma - \alpha\beta - \beta^2) + 3iZ_k(\alpha + \beta) + 2 \right] \right\} \\
&= -iZ_i \left\{ -Z_k^2 A_z^-(t) + k A_z^-(t) \left[Z_k^2(\alpha + \beta) - 3iZ_k \right] \right. \\
&\quad \left. + k^2 A_z^-(t) \left[Z_k^2(2\gamma - \alpha\beta - \beta^2) + 3iZ_k(\alpha + \beta) + 2 \right] - k \cos \theta_k Z_k^2 \right. \\
&\quad \left. + k^2 \cos \theta_k \left[Z_k^2(\alpha + \beta) - 3iZ_k \right] \right\} \tag{D.30}
\end{aligned}$$

Regardons à présent le terme q_2

$$\begin{aligned}
 q_2 &= (Z_k k + iZ_k^2)(Z_i - ik)A_z^-(t) \left[(1 + (\alpha + \beta)k \right. \\
 &\quad \left. + (2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta)k^2) \right] \\
 &= Z_k A_z^-(t)(Z_i k - ik^2 + iZ_i Z_k + Z_k k) \left[(1 + (\alpha + \beta)k \right. \\
 &\quad \left. + (2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta)k^2) \right] \\
 &= Z_k A_z^-(t)(k(Z_i + Z_k) - ik^2 + iZ_i Z_k)(1 + (\alpha + \beta)k \\
 &\quad + (2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta)k^2) \\
 &= Z_k A_z^-(t) \left[k(Z_i + Z_k) + k^2(Z_i + Z_k)(\alpha + \beta) - ik^2 + iZ_i Z_k \right. \\
 &\quad \left. + ikZ_i Z_k(\alpha + \beta) + ik^2 Z_i Z_k(2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta) \right] \\
 &= Z_k A_z^-(t) \left\{ iZ_i Z_k + k \left[Z_i + Z_k + iZ_i Z_k(\alpha + \beta) \right] \right. \\
 &\quad \left. + k^2 \left[(Z_i + Z_k)(\alpha + \beta) + iZ_i Z_k(2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta) - i \right] \right\} \quad (D.31)
 \end{aligned}$$

Enfin, le terme q_3

$$\begin{aligned}
 q_3 &= (Z_k k - iZ_k^2) \left[Z_i A_z^-(t) + (k \cos \theta_k + A_z^-(t))(Z_i - ik) \right] \\
 &= Z_k \left[kZ_i A_z^-(t) + k(k \cos \theta_k + A_z^-(t))(Z_i - ik) - iZ_i Z_k A_z^-(t) \right. \\
 &\quad \left. - iZ_k(k \cos \theta_k + A_z^-(t))(Z_i - ik) \right] \\
 &= Z_k \left[kZ_i A_z^-(t) + (k^2 \cos \theta_k + kA_z^-(t))(Z_i - ik) - iZ_i Z_k A_z^-(t) \right. \\
 &\quad \left. - iZ_k(k \cos \theta_k Z_i - k^2 i \cos \theta_k + A_z^-(t)Z_i - ikA_z^-(t)) \right] \\
 &= Z_k \left[kZ_i A_z^-(t) + k^2 Z_i \cos \theta_k + kA_z^-(t)Z_i - ik^2 A_z^-(t) - iZ_i Z_k A_z^-(t) \right. \\
 &\quad \left. - ik \cos \theta_k Z_i Z_k - k^2 \cos \theta_k Z_k - iA_z^-(t)Z_i Z_k - kA_z^-(t)Z_k \right] \\
 &= Z_k \left[-2iA_z^-(t)Z_i Z_k + k(2A_z^-(t)Z_i - iZ_i Z_k \cos \theta_k - A_z^-(t)Z_k) \right. \\
 &\quad \left. + k^2(Z_i \cos \theta_k - iA_z^-(t) - Z_k \cos \theta_k) \right] \quad (D.32)
 \end{aligned}$$

S'il on somme q_1 , q_2 et q_3 en rassemblant les termes de même degré en k , il vient

$$\begin{aligned}
\mathcal{S} &= q_1 + q_2 + q_3 \\
&= iZ_i Z_k^2 A_z^-(t) + iZ_i Z_k^2 A_z^-(t) - 2iZ_i Z_k^2 A_z^-(t) \\
&\quad + k \left\{ -iZ_i A_z^-(t) \left[Z_k^2(\alpha + \beta) - 3iZ_k \right] + i \cos \theta_k Z_i Z_k^2 + Z_i Z_k A_z^-(t) \right. \\
&\quad \left. + Z_k^2 A_z^-(t) + iZ_i Z_k^2 A_z^-(t)(\alpha + \beta) + 2Z_i Z_k A_z^-(t) - i \cos \theta_k Z_i Z_k^2 - Z_k^2 A_z^-(t) \right\} \\
&\quad + k^2 \left\{ -iZ_i A_z^-(t) \left[Z_k^2(2\gamma - \alpha\beta - \beta^2) + 3iZ_k(\alpha + \beta) + 2 \right] \right. \\
&\quad \left. - iZ_i \cos \theta_k \left[Z_k^2(\alpha + \beta) - 3iZ_k \right] \right. \\
&\quad \left. + Z_k A_z^-(t) \left[(Z_i + Z_k)(\alpha + \beta) + iZ_i Z_k(2\gamma + \alpha^2 + \alpha\beta) - i \right] \right. \\
&\quad \left. + Z_i Z_k \cos \theta_k - iZ_k A_z^-(t) - Z_k^2 \cos \theta_k \right\} \tag{D.33}
\end{aligned}$$

S'il on regarde attentivement, seuls les termes d'ordre 2 en k ne s'annulent pas. \mathcal{S} se réduit donc à

$$\begin{aligned}
\mathcal{S} &= k^2 \left\{ iZ_i Z_k^2(\alpha + \beta)^2 + 4Z_i Z_k A_z^-(t)(\alpha + \beta) + Z_k^2 A_z^-(t)(\alpha + \beta) \right. \\
&\quad \left. - iZ_i Z_k^2 \cos \theta_k(\alpha + \beta) - 2iA_z^-(t)(Z_i + Z_k) - 2Z_i Z_k \cos \theta_k \right. \\
&\quad \left. - Z_k^2 \cos \theta_k \right\} \\
&= k^2 \left\{ iZ_i Z_k^2 A_z^-(t)(\alpha + \beta)^2 + Z_k(\alpha + \beta)(4Z_i A_z^-(t) + Z_k A_z^-(t) - iZ_i Z_k \cos \theta_k) \right. \\
&\quad \left. - 2iA_z^-(t)(Z_i + Z_k) - Z_k \cos \theta_k(2Z_i + Z_k) \right\} \tag{D.34}
\end{aligned}$$

En se servant de l'expression précédente, et d'après (D.23), nous arrivons facilement à une expression de \mathcal{Q}_I

$$\begin{aligned}
\mathcal{Q}_I &= k^{-2} \mathcal{S} \\
\mathcal{Q}_I &= iZ_i Z_k^2 A_z^-(t)(\alpha + \beta)^2 + Z_k(\alpha + \beta)(4Z_i A_z^-(t) + Z_k A_z^-(t) - iZ_i Z_k \cos \theta_k) \\
&\quad - 2iA_z^-(t)(Z_i + Z_k) - Z_k \cos \theta_k(2Z_i + Z_k) \tag{D.35}
\end{aligned}$$

En utilisant les limites de chacune des expressions \mathcal{B} et \mathcal{H} de l'annexe C précédente, puis en rassemblant (D.35) dans (D.21) nous pouvons écrire la limite de $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$

$$\begin{aligned} \lim_{k \rightarrow 0} \tilde{I}_{\vec{k}}(t) &= \left(\frac{Z_i}{2} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{16}{\pi} \exp\left(\frac{\pi\nu}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu) \frac{\exp\left(-\frac{2Z_i Z_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)} + i \frac{2A_z^-(t) Z_k \cos \theta_k}{Z_i^2 + A^{-2}(t)}\right)}{(Z_i^2 + A^{-2}(t))^3} \\ &\times \left\{ i Z_i Z_k^2 A_z^-(t) (\alpha + \beta)^2 + Z_k (\alpha + \beta) (4Z_i A_z^-(t) + Z_k A_z^-(t) - i Z_i Z_k \cos \theta_k) \right. \\ &\quad \left. - 2i A_z^-(t) (Z_i + Z_k) - Z_k \cos \theta_k (2Z_i + Z_k) \right\} \end{aligned} \quad (\text{D.36})$$

Avec les définitions respectives de α , β et γ détaillées en (D.25).

D.3 Limite de $\tilde{I}_{\vec{k}}(t)$ quand $\vec{A}(t) \rightarrow 0 : \tilde{K}_{\vec{k}}(t)$

Cette limite s'écrit

$$\lim_{\vec{A}(t) \rightarrow 0} I_{\vec{k}}(t) = \tilde{K}_{\vec{k}}(t) \quad (\text{D.37})$$

Pour cela, nous devons réécrire (D.20) en supprimant tous les termes dépendants de $\vec{A}(t)$, ainsi nous avons

$$\lim_{\vec{A}(t) \rightarrow 0} I_{\vec{k}}(t) = \frac{16i\pi k_z}{\alpha^3} \left(\frac{\alpha}{\delta} \right)^{i\nu} (i\nu - 1) \left[Z_i (2 - i\nu) + \nu(k + iZ_i) \left(\frac{\alpha}{\delta} \right) \right] \quad (\text{D.38})$$

Avec les quantités $\alpha = k^2 + Z_i^2 = (Z_i + ik)(Z_i - ik)$ et $\delta = (Z_i - ik)^2$, ainsi le quotient de ces deux quantités s'écrit

$$\frac{\alpha}{\delta} = \frac{Z_i + ik}{Z_i - ik} = \frac{\rho \exp(i\varphi)}{\rho \exp(-i\varphi)} = \exp(2i\varphi) \quad (\text{D.39})$$

Et l'on peut réécrire

$$\left(\frac{\alpha}{\delta} \right)^{i\nu} = \exp(-2\varphi\nu) \quad (\text{D.40})$$

où $\varphi = \arctan\left(\frac{k}{Z_i}\right)$. Par ailleurs,

$$\nu(k + iZ_i) \frac{\alpha}{\delta} = i\nu(Z_i - ik) \frac{Z_i + ik}{Z_i - ik} = i\nu(Z_i + ik) \quad (\text{D.41})$$

Ainsi

$$Z_i(2 - i\nu) + \nu(k + iZ_i) \left(\frac{\alpha}{\delta} \right) = 2Z_i - Z_k \quad (\text{D.42})$$

Finalement en vertu de (D.42) et (D.40), (D.38) devient

$$\lim_{\vec{A}(t) \rightarrow 0} I_{\vec{k}}(t) = \frac{16i\pi k_z (2Z_i - Z_k)}{\alpha^3} \exp(-2\varphi\nu)(i\nu - 1) \quad (\text{D.43})$$

En injectant cette dernière expression dans (D.37) il vient

$$\tilde{K}_{\vec{k}}(t) = -i \frac{2^{5/2} Z_i^{3/2} (2Z_i - Z_k)}{\pi} \frac{k_z}{\alpha^3} \exp \left[\nu \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi \right) \right] \Gamma(2 - i\nu) \quad (\text{D.44})$$

Annexe E

Born et CV2 en série de perturbation

REVENONS sur l'amplitude de transition à deux photons (3.35) sans terme de déplacement électronique

$$T_{fi}^{(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt \int_0^t dt' \int d\vec{r} \Phi_f^{-*}(\vec{r}, t) \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \sum_j \Phi_j(\vec{r}, t) \times \int d\vec{r}' \Phi_j^*(\vec{r}', t') \vec{r}' \cdot \vec{E}_0(t') \Phi_i(\vec{r}', t') \quad (\text{E.1})$$

Dans l'intégrand, regardons le facteur

$$\Gamma_{ji}(t) = \int_0^t dt' \int d\vec{r}' \Phi_f^{-*}(\vec{r}', t') \vec{r}' \cdot \vec{E}_0(t') \Phi_i(\vec{r}', t') \quad (\text{E.2})$$

Et l'on définit

$$\begin{cases} \vec{E}_0(t') = \hat{\lambda} E_0(t') \\ D_{ji}(t') = \int d\vec{r} \Phi_j^*(\vec{r}, t') \vec{r} \cdot \hat{\lambda} \Phi_i(\vec{r}, t') = \langle \Phi_j(t') | \vec{r} \cdot \hat{\lambda} | \Phi_i(t') \rangle \end{cases} \quad (\text{E.3})$$

Ainsi, (E.2) devient

$$\Gamma_{ji}(t) = \int_0^t dt' E_0(t') D_{ji}(t') \quad (\text{E.4})$$

Puis, introduisons

$$A_0(t) = - \int_0^t dt' E_0(t') \quad (\text{E.5})$$

En intégrant (E.2) par parties, il vient

$$\Gamma_{ji}(t) = [-A_0(t')D_{ji}(t')]_0^t + \int_0^t dt' A_0(t') \frac{d}{dt'} D_{ji}(t') \quad (\text{E.6})$$

Comme $A_0(0) = 0$, l'équation précédente devient

$$\Gamma_{ji}(t) = -A_0(t)D_{ji}(t) + \int_0^t dt' A_0(t') \frac{d}{dt'} D_{ji}(t') \quad (\text{E.7})$$

Examinons en détail le deuxième terme du membre de droite de (E.7)

$$\frac{d}{dt} D_{ji}(t) = \left\langle \frac{d}{dt} \Phi_j(t) \left| \vec{r} \cdot \hat{\lambda} \right| \Phi_i(t) \right\rangle + \left\langle \Phi_j(t) \left| \vec{r} \cdot \hat{\lambda} \right| \frac{d}{dt} \Phi_i(t) \right\rangle \quad (\text{E.8})$$

où les dérivées par rapport au temps du bra et du ket sont

$$\begin{cases} \left| \frac{d}{dt} \Phi_i(t) \right\rangle = \frac{1}{i} \left(i \frac{d}{dt} \right) |\Phi_i(t)\rangle = \frac{1}{i} \mathcal{H}_0 |\Phi_i(t)\rangle = \frac{\varepsilon_i}{i} |\Phi_i(t)\rangle \\ \left\langle \frac{d}{dt} \Phi_i(t) \right| = -\frac{\varepsilon_i}{i} \langle \Phi_i(t)| \end{cases} \quad (\text{E.9})$$

Finalement, nous obtenons

$$\frac{d}{dt} D_{ji}(t) = \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_j}{i} \left\langle \Phi_j(t) \left| \vec{r} \cdot \hat{\lambda} \right| \Phi_i(t) \right\rangle = \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_j}{i} D_{ji}(t) \quad (\text{E.10})$$

En intégrant cette dernière équation, il vient

$$D_{ji}(t) = D_{ji}(0) \exp [i(\varepsilon_j - \varepsilon_i)t] \quad (\text{E.11})$$

Ainsi, nous pouvons réécrire $\Gamma_{ji}(t)$

$$\Gamma_{ji}(t) = -A_0(t)D_{ji}(t) + i(\varepsilon_j - \varepsilon_i)D_{ji}(0) \int_0^t dt' A_0(t') \exp [i(\varepsilon_j - \varepsilon_i)t'] \quad (\text{E.12})$$

Or nous pouvons réécrire le deuxième terme du développement Born comme

$$T_{fi}^{(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) \Gamma_{ji}(t) \quad (\text{E.13})$$

En injectant l'expression (E.12) dans l'équation précédente, il vient

$$\begin{aligned}
T_{fi}^{(2)} = & -(-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) A_0(t) D_{ji}(t) \\
& + (-i\alpha)^2 i(\varepsilon_j - \varepsilon_i) \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) D_{ji}(0) \\
& \times \int_0^t dt' A_0(t') \exp[i(\varepsilon_j - \varepsilon_i)t']
\end{aligned} \tag{E.14}$$

D'un autre côté, le développement CV2 au deuxième ordre est (cf. eq. (3.43))

$$T_{fi}^{CV2-(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt \int d\vec{r} \Phi_f^{-*}(\vec{r}, t) \vec{r} \cdot \vec{A}_0^-(t) \vec{r} \cdot \vec{E}_0(t) \Phi_i(\vec{r}, t) \tag{E.15}$$

En introduisant une relation de fermeture, nous parvenons à l'expression suivante

$$\begin{aligned}
T_{fi}^{CV2-(2)} = & (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt \int d\vec{r} \Phi_f^{-*}(\vec{r}, t) \vec{r} \cdot \vec{A}_0^-(t) \\
& \times \int d\vec{r}' \sum_j \Phi_j(\vec{r}, t) \Phi_j^*(\vec{r}', t) \vec{r}' \cdot \vec{E}_0(t) \Phi_i(\vec{r}', t)
\end{aligned} \tag{E.16}$$

Soit, en suivant la définition de $D_{ji}(t)$

$$\begin{aligned}
T_{fi}^{CV2-(2)} = & (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt A_0^-(t) \sum_j D_{fj}(t) E_0(t) D_{ji}(t) \\
= & (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) A_0^-(t) D_{ji}(t) \\
= & (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) \int_0^t dt' \delta(t' - t) A_0^-(t') D_{ji}(t')
\end{aligned} \tag{E.17}$$

En introduisant

$$\tilde{\Gamma}_{ji}(t) = \int_0^t dt' \delta(t' - t) A_0^-(t') D_{ji}(t') = -D_{ji}(t) \int_0^t dt' E_0(t') \tag{E.18}$$

Nous obtenons finalement

$$T_{fi}^{CV2-(2)} = (-i\alpha)^2 \int_0^\tau dt E_0(t) \sum_j D_{fj}(t) \tilde{\Gamma}_{ji}(t) \tag{E.19}$$

Annexe F

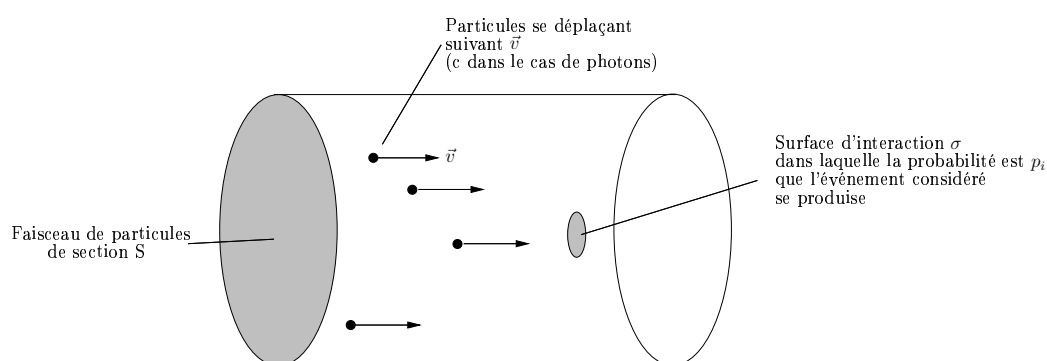
La section efficace totale d'interaction photon-atome

AFIN de donner une formulation précise de la section efficace totale d'interaction photon-atome que l'on utilise tout au long de ce manuscrit, il faut partir de sa définition initiale issue de la physique nucléaire

DÉFINITION 1 (LA SECTION EFFICACE)

La section efficace est la surface fictive que devrait avoir une particule cible pour reproduire la probabilité observée de collision ou de réaction avec une autre particule en supposant que ces collisions se produisent entre objets matériels impénétrables.

Ceci peut être résumé par le schéma suivant



Pour un faisceau incident, la probabilité totale d'interaction par unité de temps se définit comme la probabilité d'interaction individuelle (par particules) que multiplie le nombre de particules incidentes par unité de temps

$$P = p_i \times n_i \quad (\text{F.1})$$

Cette probabilité individuelle peut être définie comme le rapport de la surface d'interaction appelée σ pour une particule cible (à l'intérieur de laquelle la probabilité d'interaction est p_i) avec la section totale du faisceau de particules incidentes

$$p_i = \frac{\sigma}{S} \quad (\text{F.2})$$

Par ailleurs, le nombre de particules par unité de temps se définit comme la densité de particules n multipliée par une unité de volume par unité de temps que l'on obtient par la multiplication de la section S par la vitesse v (c dans le cas de photons)

$$n_i = n \times S \times c \quad (\text{F.3})$$

En injectant (F.3) et (F.2) dans (F.1) nous obtenons la probabilité par unité de temps

$$P = \sigma \times n \times c \quad (\text{F.4})$$

Par ailleurs, l'intensité s'exprime comme l'énergie par unité de surface et par unité de temps. Ceci peut être écrit comme le nombre de particules par unité de surface et par unité ($n \times c$) de temps que multiplie l'énergie de chaque particule

$$I = n \times c \times \hbar\omega \quad (\text{F.5})$$

On peut en tirer une expression de n

$$n = \frac{I}{c \times \hbar\omega} \quad (\text{F.6})$$

Puis

$$P = \frac{\sigma}{\hbar\omega} \times I \quad (\text{F.7})$$

Enfin nous pouvons définir \mathcal{P} la probabilité totale comme

$$\mathcal{P} = \int_0^\tau dt P = \frac{\sigma}{\hbar\omega} \int_0^\tau dt I(t) \quad (\text{F.8})$$

où τ représente la durée d'interaction entre le faisceau et les particules cibles. À présent, regardons comment nous pouvons exprimer l'intensité. Dès lors que

l'on est en présence d'un champ électromagnétique, la puissance instantanée par unité de volume s'écrit

$$\mathcal{W} = \frac{\varepsilon_0}{2} E^2(t) + \frac{1}{2\mu_0} B^2(t) = \varepsilon_0 E^2(t) \quad (\text{F.9})$$

D'où l'intensité par unité de surface et de temps

$$I(t) = \mathcal{W} \times c = \varepsilon_0 c E^2(t) \quad (\text{F.10})$$

Si on écrit le champ électrique intervenant dans l'expression précédente comme un produit d'une amplitude, d'une porteuse et d'une enveloppe ou profil temporel

$$E(t) = E_0 \sin(\omega t + \varphi) f(t) \quad (\text{F.11})$$

Ce qui nous mène à

$$\int_0^\tau dt I(t) = \varepsilon_0 c E_0^2 \int_0^\tau dt \sin^2(\omega t + \varphi) f^2(t) \quad (\text{F.12})$$

En utilisant l'approximation de l'enveloppe variant lentement par rapport à la porteuse, il est possible de découpler chacune de leurs contributions. Ainsi, celle de la porteuse nous donne $\frac{1}{2}$, on peut donc obtenir une expression de \mathcal{P}

$$\mathcal{P} = \frac{\sigma}{\hbar\omega} \frac{\varepsilon_0 c}{2} E_0^2 \int_0^\tau dt f^2(t) \quad (\text{F.13})$$

Appelons $C(1)$ la moyenne temporelle de l'enveloppe

$$C(1) = \frac{1}{\tau} \int_0^\tau dt f^2(t) \quad (\text{F.14})$$

En vertu de ce qui précède, il est possible de déduire de (F.13) une expression de σ

$$\sigma = \frac{\hbar\omega}{\frac{\varepsilon_0 c}{2} E_0^2} \times \frac{\mathcal{P}}{\tau \times C(1)} \quad (\text{F.15})$$

A ce stade, rappelons que σ est en cm^{-2} , $\hbar\omega$ doit être exprimé en Joules, $I_0 = \frac{\varepsilon_0 c}{2} E_0^2$ en W.cm^{-2} et τ en secondes. Soit, en *u.a.*

$$\sigma = \frac{\omega}{I_0} \times \frac{\mathcal{P}}{\tau \times C(1)} \quad (\text{F.16})$$

En suivant la même démarche, ce calcul peut être généralisé à N photons

$$\mathcal{P}_N = \frac{\sigma^{(N)}}{S^N} \times n_i^N \quad (\text{F.17})$$

Et

$$\frac{\sigma^{(N)}}{S^N} (nSc)^N = n^N \sigma^{(N)} c^N \quad (\text{F.18})$$

Donc

$$\mathcal{P}_N = n^N \sigma^{(N)} c^N \quad (\text{F.19})$$

Par ailleurs

$$n^N = \frac{I^N}{c^N (\hbar\omega)^N} \quad (\text{F.20})$$

Ce qui nous donne

$$\mathcal{P}_N = \int_0^\tau dt P_N = \frac{\sigma^{(N)}}{(\hbar\omega)^N} \int_0^\tau dt I^N(t) \quad (\text{F.21})$$

Définissons aussi la moyenne temporelle de l'intensité

$$C(N) = \frac{1}{\tau} \int_0^\tau dt f^{2N}(t) \quad (\text{F.22})$$

Finalement on tire de l'expression précédente, et de

$$\int_0^\tau dt I^N(t) = I_0^N \int_0^\tau dt f^{2N}(t) \quad (\text{F.23})$$

l'expression de la section efficace généralisée à N photons en *u.a.*

$$\sigma^{(N)} = \frac{\omega^N}{I_0^N} \times \frac{\mathcal{P}_N}{\tau \times C(N)} \quad (\text{F.24})$$

Une analyse dimensionnelle nous permet d'écrire la correspondance suivante entre la section efficace à un photon exprimée en $[u.a.]^2$ de longueur et celle exprimée en mégabarns ($1Mb = 10^{-18}cm^2$)

$$\sigma_{[Mb]} = 5,29177 \times \sigma_{[u.a.]} \quad (\text{F.25})$$

Le tableau ci-après résume les calculs des premiers $C(N)$ effectués avec différents profils temporels d'impulsions laser.

$C(N)$	Profil temporel	Valeur
$C(1)$	$f(t) = \theta(t - \tau)$	$\frac{1}{2}$
$C(1)$	$f(t) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau}\right)$	$\frac{3}{8}$
$C(2)$	$f(t) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau}\right)$	$\frac{35}{128}$
$C(2)$	$f(t) = \exp\left(-4 \ln 2 \times \left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2\right)$	$\frac{\sqrt{\pi}}{8} \times \frac{\operatorname{erf}(4(\ln 2)^{1/2})}{(\ln 2)^{1/2}}$

TAB. F.1 – Valeur des coefficients sans dimension $C(N)$ pour différents profils temporels d'impulsions laser.

Annexe **G**

Amplitude de transition avec état fondamental amélioré

LE but de cette annexe est le développement de la partie intégrale de l'équation (6.5) sur \vec{r}_1 et \vec{r}_2 que l'on appelle R

$$\begin{aligned}
 R = N(1 + \lambda^2)^{-1/2} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
 \times \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2) \\
 \times \left\{ \mathcal{N} \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right] \right. \\
 \left. + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \right\}
 \end{aligned} \tag{G.1}$$

Découpons l'expression précédente en quatre intégrales représentant la contribution de chaque orbitale

$$R = N(1 + \lambda^2)^{-1/2} (R_{1s} + R_{2p_0} + R_{2p_+} + R_{2p_-}) \tag{G.2}$$

où l'on a R_{1s}

$$\begin{aligned}
 R_{1s} = \mathcal{N} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
 \times \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2) \\
 \times \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right]
 \end{aligned} \tag{G.3}$$

Détaillons à présent le calcul de cette contribution, il vient en développant l'expression précédente

$$\begin{aligned}
R_{1s} = \mathcal{N} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \times \\
\left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \right. \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \quad (\text{G.4}) \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \\
\left. + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right]
\end{aligned}$$

Nous remarquons que le premier et le huitième terme, le second et le septième et ainsi de suite, sont identiques dans l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$. L'équation précédente se réduit alors à

$$\begin{aligned}
R_{1s} = 2\mathcal{N} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \times \\
\left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \right. \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \quad (\text{G.5}) \\
+ \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \\
\left. + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \right]
\end{aligned}$$

Divisons encore R_{1s} en quatre intégrales telles que

$$R_{1s} = 2\mathcal{N}(R_{1s}^1 + R_{1s}^2 + R_{1s}^3 + R_{1s}^4) \quad (\text{G.6})$$

Avec respectivement

$$\begin{aligned}
R_{1s}^1 &= \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
&\quad \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \\
R_{1s}^2 &= \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
&\quad \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \\
R_{1s}^3 &= \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
&\quad \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \\
R_{1s}^4 &= \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
&\quad \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2)
\end{aligned} \tag{G.7}$$

Regardons tout d'abord R_{1s}^1 que l'on met sous la forme suivante à l'aide des expressions des fonctions d'onde (6.2)

$$\begin{aligned}
R_{1s}^1 &= \frac{\exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right]}{8\pi^4} \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') (ab)^{3/2} \\
&\quad \times \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i \left(\vec{A}^-(t) + \vec{k} \right) \cdot \vec{r}_1 - i \left(\vec{A}^-(t) + \vec{k}' \right) \cdot \vec{r}_2 \right] \\
&\quad \times {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) {}_1F_1 \left(i\nu'; 1; ik'r_2 + i\vec{k}' \cdot \vec{r}_2 \right) r_1 \cos \theta_1 \\
&\quad \times \exp(-ar_1 - br_2)
\end{aligned} \tag{G.8}$$

Posons $\vec{\alpha} = \vec{A}^-(t) + \vec{k}$ et $\vec{\beta} = \vec{A}^-(t) + \vec{k}'$ ainsi que $\mathcal{C}_1 = \frac{\exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right]}{8\pi^4} \times \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') (ab)^{3/2}$, ainsi l'expression précédente devient

$$\begin{aligned}
R_{1s}^1 &= \mathcal{C}_1 \int d\vec{r}_1 \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1 - ar_1) r_1 \cos \theta_{11} {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) \\
&\quad \times \int d\vec{r}_2 \exp(-i\vec{\beta} \cdot \vec{r}_2 - br_2) {}_1F_1 \left(i\nu'; 1; ik'r_2 + i\vec{k}' \cdot \vec{r}_2 \right)
\end{aligned} \tag{G.9}$$

On voit immédiatement que l'intégrale sur \vec{r}_2 est équivalente à $J_{\vec{k}'}(t)$ et sur \vec{r}_1 à $J_{\vec{k}}(t)$ des annexes C et D respectivement. En utilisant les résultats de ces annexes, nous obtenons

$$\begin{aligned}
\int d\vec{r}_1(\dots) &= I_{\vec{k}}(t) \\
&= 16\pi \mathcal{B}_1^{i\nu-2} \mathcal{H}_1^{-(i\nu+1)} \left\{ -ia\alpha_z(1-i\nu)(2-i\nu)\mathcal{B}_1^{-1}\mathcal{H}_1 \right. \\
&\quad \left. + \nu(1+i\nu)A_z^-(t)(a-ik)\mathcal{H}_1^{-1}\mathcal{B} + \nu(1-i\nu)[\alpha_z(a-ik) \right. \\
&\quad \left. + aA_z^-(t)] \right\}
\end{aligned} \tag{G.10}$$

et également

$$\begin{aligned}
\int d\vec{r}_2(\dots) &= J_{\vec{k}'}(t) \\
&= 8\pi \mathcal{B}'_1^{i\nu'-2} \mathcal{H}'_1^{-(i\nu'+1)} [b(1-i\nu)\mathcal{H}'_1 + i\nu'(b-ik')\mathcal{B}'_1]
\end{aligned} \tag{G.11}$$

avec

$$\begin{cases} \mathcal{B}_1 = \alpha^2 + a^2 & \mathcal{H}_1 = \mathcal{B}_1 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + iak) & \nu = \frac{Z_k}{k} \\ \mathcal{B}'_1 = \beta^2 + b^2 & \mathcal{H}'_1 = \mathcal{B}'_1 - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + ibk') & \nu' = \frac{Z_{k'}}{k'} \end{cases} \tag{G.12}$$

Au final, nous pouvons écrire R_{1s}^1 en utilisant (G.11) et (G.10) dans (G.9)

$$\begin{aligned}
R_{1s}^1 &= 128\pi^2 \mathcal{C}_1 \mathcal{B}_1^{i\nu-2} \mathcal{B}'_1^{i\nu'-2} \mathcal{H}_1^{-i\nu-1} \mathcal{H}'_1^{-i\nu'-1} [b(1-i\nu')\mathcal{H}'_1 + i\nu'(b-ik')\mathcal{B}'_1] \\
&\quad \times \left\{ -ia\alpha_z(1-i\nu)(2-i\nu)\mathcal{B}_1^{-1}\mathcal{H}_1 + \nu(1+i\nu)A_z^-(t)(a-ik)\mathcal{H}_1^{-1}\mathcal{B}_1 \right. \\
&\quad \left. + \nu(1-i\nu)[\alpha_z(a-ik) + aA_z^-(t)] \right\}
\end{aligned} \tag{G.13}$$

Si l'on examine R_{1s}^2 , nous remarquons qu'elle est similaire à R_{1s}^1 sauf qu'il faut changer k en k' . Nous pouvons donc directement réécrire son expression, en notant que le coefficient est identique à celui de R_{1s}^1

$$\begin{aligned}
R_{1s}^2 &= 128\pi^2 \mathcal{C}_1 \mathcal{B}_2^{i\nu-2} \mathcal{B}'_2^{i\nu'-2} \mathcal{H}_2^{-i\nu-1} \mathcal{H}'_2^{-i\nu'-1} [b(1-i\nu)\mathcal{H}_2 + i\nu(b-ik)\mathcal{B}_2] \\
&\quad \times \left\{ -ia\beta_z(1-i\nu')(2-i\nu')\mathcal{B}'_2^{-1}\mathcal{H}'_2 + \nu'(1+i\nu')A_z^-(t)(a-ik')\mathcal{H}'_2^{-1}\mathcal{B}'_2 \right. \\
&\quad \left. + \nu'(1-i\nu')[\beta_z(a-ik') + aA_z^-(t)] \right\}
\end{aligned} \tag{G.14}$$

où l'on a

$$\begin{cases} \mathcal{B}_2 = \alpha^2 + b^2 & \mathcal{H}_2 = \mathcal{B}_2 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + ibk) \\ \mathcal{B}'_2 = \beta^2 + a^2 & \mathcal{H}'_2 = \mathcal{B}'_2 - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + iak') \end{cases} \quad (\text{G.15})$$

En suivant la même démarche, nous remarquons que R_{1s}^3 est similaire à R_{1s}^2 sauf qu'il faut changer a en b . Nous obtenons donc

$$\begin{aligned} R_{1s}^3 = & 128\pi^2 \mathcal{C}_1 \mathcal{B}_3^{i\nu-2} \mathcal{B}'_3^{i\nu'-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu-1} \mathcal{H}'_3^{-i\nu'-1} [a(1-i\nu)\mathcal{H}_3 + i\nu(a-ik)\mathcal{B}_3] \\ & \times \left\{ -ib\beta_z(1-i\nu')(2-i\nu')\mathcal{B}_3^{-1}\mathcal{H}'_3 + \nu'(1+i\nu')A_z^-(t)(b-ik')\mathcal{H}'_2^{-1}\mathcal{B}'_2 \right. \\ & \left. + \nu'(1-i\nu')[\beta_z(b-ik') + bA_z^-(t)] \right\} \end{aligned} \quad (\text{G.16})$$

où l'on a

$$\begin{cases} \mathcal{B}_3 = \alpha^2 + a^2 & \mathcal{H}_3 = \mathcal{B}_3 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + iak) \\ \mathcal{B}'_3 = \beta^2 + b^2 & \mathcal{H}'_3 = \mathcal{B}'_3 - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + ibk') \end{cases} \quad (\text{G.17})$$

Enfin, nous remarquons que R_{1s}^4 est similaire à R_{1s}^3 sauf qu'il faut changer k en k' . Nous obtenons donc

$$\begin{aligned} R_{1s}^4 = & 128\pi^2 \mathcal{C}_1 \mathcal{B}_4^{i\nu-2} \mathcal{B}'_4^{i\nu'-2} \mathcal{H}_4^{-i\nu-1} \mathcal{H}'_4^{-i\nu'-1} [a(1-i\nu')\mathcal{H}'_4 + i\nu'(a-ik')\mathcal{B}'_4] \\ & \times \left\{ -ib\alpha_z(1-i\nu)(2-i\nu)\mathcal{B}_4^{-1}\mathcal{H}_4 + \nu(1+i\nu)A_z^-(t)(b-ik)\mathcal{H}_4^{-1}\mathcal{B}_4 \right. \\ & \left. + \nu(1-i\nu)[\alpha_z(b-ik) + bA_z^-(t)] \right\} \end{aligned} \quad (\text{G.18})$$

où l'on a

$$\begin{cases} \mathcal{B}_4 = \alpha^2 + b^2 & \mathcal{H}_4 = \mathcal{B}_4 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + ibk) \\ \mathcal{B}'_4 = \beta^2 + a^2 & \mathcal{H}'_4 = \mathcal{B}'_4 - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + iak') \end{cases} \quad (\text{G.19})$$

Ainsi, en utilisant chacune des expressions des intégrales R_{1s}^i nous en déduisons l'expression finale de R_{1s} en remarquant que $\mathcal{B}_1 = \mathcal{B}_3$, $\mathcal{B}'_1 = \mathcal{B}'_3$, $\mathcal{B}_2 = \mathcal{B}_4$, $\mathcal{B}'_2 = \mathcal{B}'_4$, $\mathcal{H}_1 = \mathcal{H}_3$, $\mathcal{H}'_1 = \mathcal{H}'_3$, $\mathcal{H}_2 = \mathcal{H}_4$, $\mathcal{H}'_2 = \mathcal{H}'_4$ et nous pouvons les mettre en facteur en ne conservant que les expressions en 1 et 2

$$\begin{aligned}
R_{1s} = & 256\pi^2 \mathcal{N} C_{1s} \left(\mathcal{B}_1^{\text{i}\nu-2} \mathcal{B}_1^{\text{i}\nu'-2} \mathcal{H}_1^{-\text{i}\nu-1} \mathcal{H}_1'^{-\text{i}\nu'-1} \right. \\
& \times \left\{ \left[b(1 - \text{i}\nu') \mathcal{H}_1' + \text{i}\nu'(b - \text{i}k') \mathcal{B}_1' \right] \left[-\text{i}a(k_z + A_z^-(t))(1 - \text{i}\nu)(2 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_1^{-1} \mathcal{H}_1 \right. \right. \\
& + \nu(1 + \text{i}\nu) A_z^-(t)(a - \text{i}k) \mathcal{H}_1^{-1} \mathcal{B}_1 + \nu(1 - \text{i}\nu) [(k_z + A_z^-(t))(a - \text{i}k) + a A_z^-(t)] \\
& + \left. \left[a(1 - \text{i}\nu) \mathcal{H}_1 + \text{i}\nu(a - \text{i}k) \mathcal{B}_1 \right] \left[-\text{i}b(k'_z + A_z^-(t))(1 - \text{i}\nu')(2 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_1'^{-1} \mathcal{H}_1' \right. \right. \\
& + \nu'(1 + \text{i}\nu') A_z^-(t)(b - \text{i}k') \mathcal{H}_1'^{-1} \mathcal{B}_1' + \nu'(1 - \text{i}\nu') [(k'_z + A_z^-(t))(b - \text{i}k') + b A_z^-(t)] \left. \right] \left. \right\} \\
& + \mathcal{B}_2^{\text{i}\nu-2} \mathcal{B}_2^{\text{i}\nu'-2} \mathcal{H}_2^{-\text{i}\nu-1} \mathcal{H}_2'^{-\text{i}\nu'-1} \\
& \times \left\{ \left[b(1 - \text{i}\nu) \mathcal{H}_2 + \text{i}\nu(b - \text{i}k) \mathcal{B}_2 \right] \left[-\text{i}a(k'_z + A_z^-(t))(1 - \text{i}\nu')(2 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_2'^{-1} \mathcal{H}_2' \right. \right. \\
& + \nu'(1 + \text{i}\nu') A_z^-(t)(a - \text{i}k') \mathcal{H}_2'^{-1} \mathcal{B}_2' + \nu'(1 - \text{i}\nu') [(k'_z + A_z^-(t))(a - \text{i}k') + a A_z^-(t)] \left. \right] \\
& + \left[a(1 - \text{i}\nu') \mathcal{H}_2' + \text{i}\nu'(a - \text{i}k') \mathcal{B}_2' \right] \left[-\text{i}b(k_z + A_z^-(t))(1 - \text{i}\nu)(2 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_2^{-1} \mathcal{H}_2 \right. \\
& + \nu(1 + \text{i}\nu) A_z^-(t)(b - \text{i}k) \mathcal{H}_2^{-1} \mathcal{B}_2 + \nu(1 - \text{i}\nu) [(k_z + A_z^-(t))(b - \text{i}k) + b A_z^-(t)] \left. \right] \left. \right\} \Bigg) \\
& \quad \quad \quad (\text{G.20})
\end{aligned}$$

avec chaque quantité définie par

$$\left\{ \begin{array}{ll} \vec{\alpha} = \vec{A}^-(t) + \vec{k} & \vec{\beta} = \vec{A}^-(t) + \vec{k}' \\ \nu = \frac{Z_k}{k} & \nu' = \frac{Z_{k'}}{k'} \\ \mathcal{B}_1 = \alpha^2 + a^2 & \mathcal{B}_2 = \alpha^2 + b^2 \\ \mathcal{B}_1' = \beta^2 + b^2 & \mathcal{B}_2' = \beta^2 + a^2 \\ \mathcal{H}_1 = \mathcal{B}_1 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + \text{i}ak) & \mathcal{H}_2 = \mathcal{B}_2 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + \text{i}bk) \\ \mathcal{H}_1' = \mathcal{B}_1' - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + \text{i}bk') & \mathcal{H}_2' = \mathcal{B}_2' - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + \text{i}ak') \\ C_{1s} = \frac{\exp\left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu')\right]}{8\pi^4} \Gamma(1 - \text{i}\nu) \Gamma(1 - \text{i}\nu') (ab)^{3/2} \end{array} \right. \quad (\text{G.21})$$

A présent regardons R_{2p_0} qui s'écrit comme

$$\begin{aligned}
 R_{2p_0} = & \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
 & \times \left[\psi_k^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_k^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2) \quad (\text{G.22}) \\
 & \times \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2)
 \end{aligned}$$

Développons l'intégrand

$$\begin{aligned}
 R_{2p_0} = & \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
 & \times \left[\psi_k^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \right. \\
 & \quad \left. + \psi_k^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{G.23}) \right. \\
 & \quad \left. + \psi_k^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \right. \\
 & \quad \left. + \psi_k^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \right]
 \end{aligned}$$

Nous remarquons que le premier et le quatrième terme ainsi que le second et le troisième sont identiques dans l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$. Ainsi R_{2p_0} devient

$$\begin{aligned}
 R_{2p_0} = & \frac{2\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
 & \times \left[\psi_k^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \right. \\
 & \quad \left. + \psi_k^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \right] \quad (\text{G.24})
 \end{aligned}$$

Une fois encore, divisons R_{2p_0} en deux intégrales telles que

$$R_{2p_0} = \frac{2\lambda}{\sqrt{3}} (R_{2p_0}^1 + R_{2p_0}^2) \quad (\text{G.25})$$

Chacune d'entre elles s'écrivant alors

$$\begin{aligned}
 R_{2p_0}^1 = & \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
 & \times \psi_k^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{k'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{G.26})
 \end{aligned}$$

et

$$R_{2p_0}^2 = \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{G.27})$$

Regardons tout d'abord $R_{2p_0}^1$ que l'on met sous la forme

$$R_{2p_0}^1 = \int d\vec{r}_1 \exp \left(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_1 \right) \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \times \int d\vec{r}_2 \exp \left(-i\vec{A}^-(t) \cdot \vec{r}_2 \right) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{G.28})$$

Intéressons-nous à l'intégrale sur \vec{r}_1 et en utilisant la définition des fonctions d'onde, nous pouvons réécrire à l'aide de $\vec{\alpha} = \vec{A}^-(t) + \vec{k}$

$$\int d\vec{r}_1 (\dots) = \frac{2^{-3/2}}{\pi^2} \exp \left(\frac{\pi\nu}{2} \right) \Gamma(1 - i\nu) g^{5/2} \times \int d\vec{r}_1 \exp \left(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1 - gr_1 \right) {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) (r_1 \cos \theta_1)^2 \quad (\text{G.29})$$

Que l'on peut mettre sous la forme suivante, en suivant la même démarche que pour l'intégrale $I_{\vec{k}}(t)$ de l'annexe D et en posant $\mathcal{C}_{r_1} = \frac{2^{-3/2}}{\pi^2} \exp \left(\frac{\pi\nu}{2} \right) \Gamma(1 - i\nu) g^{5/2}$

$$\int d\vec{r}_1 (\dots) = \mathcal{C}_{r_1} \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right)^2 \left(- \frac{\partial}{\partial g} \right) \times \int d\vec{r}_1 \frac{\exp \left(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1 - gr_1 \right)}{r_1} {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) \quad (\text{G.30})$$

La partie intégrale de l'expression précédente a déjà été calculée dans l'annexe C et nous pouvons directement écrire

$$\int d\vec{r}_1 (\dots) = 8\pi \mathcal{C}_{r_1} \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right)^2 \mathcal{B}_3^{i\nu-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu-1} [g(1 - i\nu) \mathcal{H}_3 + i\nu(g - ik) \mathcal{B}_3] \quad (\text{G.31})$$

Posons $\mathcal{P}_1 = [g(1 - i\nu) \mathcal{H}_3 + i\nu(g - ik) \mathcal{B}_3]$, l'expression précédente devient

$$\int d\vec{r}_1(\dots) = -8\pi\mathcal{C}_{r_1} \left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) \left[\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) (\mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1})\mathcal{P}_1 \right. \\ \left. + \mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1} \left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) \mathcal{P}_1 \right] \quad (\text{G.32})$$

Regardons chaque dérivation

$$\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) (\mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1}) = 2\mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1} [\alpha_z(i\nu-2)\mathcal{B}_3^{-1} \\ - (\alpha_z - k_z)(1+i\nu)\mathcal{H}_3^{-1}] \quad (\text{G.33}) \\ \left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) \mathcal{P}_1 = 2(\alpha_z - k_z)g(1-i\nu) + 2\alpha_z i\nu(g-ik)$$

En injectant chacune de ces expressions dans (G.32) il vient

$$\int d\vec{r}_1(\dots) = -16\pi\mathcal{C}_{r_1} \left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) (\mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1}) \left\{ [\alpha_z(i\nu-2)\mathcal{B}_3^{-1} \right. \\ \left. - (\alpha_z - k_z)(1+i\nu)\mathcal{H}_3^{-1}] [g(1-i\nu)\mathcal{H}_3 + i\nu(g-ik)\mathcal{B}] \right. \\ \left. + (\alpha_z - k_z)g(1-i\nu) + \alpha_z i\nu(g-ik) \right\} \quad (\text{G.34})$$

Puis, en posant \mathcal{P}_2 égal au terme entre parenthèses de l'expression précédente, cette dernière devient

$$\int d\vec{r}_1(\dots) = -16\pi\mathcal{C}_{r_1} \left[\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) (\mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1})\mathcal{P}_2 \right. \\ \left. + \mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1} \left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) \mathcal{P}_2 \right] \quad (\text{G.35})$$

Regardons la dérivation de \mathcal{P}_2

$$\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z} \right) \mathcal{P}_2 = [(i\nu-2)\mathcal{B}_3^{-1}(1-2\alpha_z^2\mathcal{B}_3^{-1}) - (1+i\nu)\mathcal{H}_3^{-1}(1-2A^{-2}(t)\mathcal{H}_3^{-1})] \\ \times [g(i\nu-2)\mathcal{H}_3 + i\nu(g-ik)\mathcal{B}_3^{-1}] + 2[\alpha_z(i\nu-2)\mathcal{B}_3^{-1} \\ - A^-(t)(1+i\nu)\mathcal{H}_3^{-1}] [A^-(t)g(1-i\nu) + \alpha_z i\nu(g-ik)] \\ + g(1-i\nu) + i\nu(g-ik) \quad (\text{G.36})$$

Pour des raisons de simplicité, nous garderons des expressions \mathcal{P}_2 et $\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z}\right)\mathcal{P}_2$ sachant que l'on pourra toujours se référer à la formulation donnée ci-dessus. Au final, nous pouvons simplement réécrire l'intégrale sur \vec{r}_1 comme

$$\int d\vec{r}_1(\dots) = -16\pi\mathcal{C}_{r_1}\mathcal{B}_3^{i\nu-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu-1}\left\{2[\alpha_z(i\nu-2)\mathcal{B}_3^{-1}-A^-(1+i\nu)\mathcal{H}_3^{-1}]\right. \\ \left.+\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z}\right)\mathcal{P}_2\right\} \quad (\text{G.37})$$

Regardons maintenant l'intégrale sur \vec{r}_2 de (G.27) que l'on peut mettre sous la forme

$$\int d\vec{r}_2(\dots) = (2\pi)^{-3/2}\exp\left(\frac{\pi\nu'}{2}\right)\Gamma(1-i\nu')\pi^{-1/2}g^{5/2} \\ \times \int d\vec{r}_2 \exp\left[-i\left(\vec{A}^-(t)+\vec{k}'\right)\cdot\vec{r}_2\right] {}_1F_1\left(i\nu';1;ikr_2+i\vec{k}\cdot\vec{r}_2\right) \\ \times r_2 \cos\theta_2 \exp(-gr_2) \quad (\text{G.38})$$

Avec $\vec{\beta} = \vec{A}^-(t)+\vec{k}'$ et $\mathcal{C}_{r_2} = 2^{-3/2}\pi^{-2}\exp\left(\frac{\pi\nu'}{2}\right)\Gamma(1-i\nu')g^{5/2}$, nous pouvons voir apparaître l'intégrale $I_{\vec{k}}(t)$, en utilisant son expression dans l'équation précédente, il vient

$$\int d\vec{r}_2(\dots) = 16\pi\mathcal{C}_{r_2}\mathcal{B}_3^{i\nu'-2}\mathcal{H}_3^{-i\nu'-1}\left\{-ig\beta_z(1-i\nu')(2-i\nu')\mathcal{H}_3'\mathcal{B}_3'^{-1} \right. \\ \left. +\nu'A^-(1+i\nu')(g-ik')\mathcal{B}_3'\mathcal{H}_3'^{-1} +\nu'(1-i\nu')[\beta_z(g-ik') \right. \\ \left. +gA^-]\right\} \quad (\text{G.39})$$

Rappelons que l'on a $\mathcal{B}'_3 = \beta^2 + g^2$, $\mathcal{H}'_3 = \mathcal{B}'_3 - 2(\vec{\beta}\cdot\vec{k}' + ik'g)$. En définitive, si l'on reporte chacune des expressions des intégrales sur \vec{r}_1 et \vec{r}_2 , nous pouvons en déduire une expression de $R_{2p_0}^1$

$$\begin{aligned}
R_{2p_0}^1 = & -(16\pi)^2 \mathcal{C}_{r_1} \mathcal{C}_{r_2} \mathcal{B}_3^{i\nu-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu-1} \mathcal{B}_3^{i\nu'-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu'-1} \left\{ -ig\beta_z(1-i\nu') \right. \\
& \times (2-i\nu') \mathcal{H}_3' \mathcal{B}_3'^{-1} + \nu' A^-(t)(1+i\nu')(g-ik') \mathcal{B}_3' \mathcal{H}_3'^{-1} + \nu'(1-i\nu') \\
& \times [\beta_z(g-ik') + gA^-(t)] \left. \right\} \left\{ 2[\alpha_z(i\nu-2) \mathcal{B}_3^{-1} - A^-(t)(1+i\nu) \mathcal{H}_3^{-1}] \mathcal{P}_2 \right. \\
& \left. + \left(\frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \mathcal{P}_2 \right\}
\end{aligned} \tag{G.40}$$

Si l'on regarde $R_{2p_0}^2$, il s'agit simplement de $R_{2p_0}^1$ où l'on change k pour k' , on peut donc l'écrire comme

$$\begin{aligned}
R_{2p_0}^2 = & -(16\pi)^2 \mathcal{C}_{r_1} \mathcal{C}_{r_2} \mathcal{B}_3^{i\nu-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu-1} \mathcal{B}_3^{i\nu'-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu'-1} \left\{ -ig\alpha_z(1-i\nu) \right. \\
& \times (2-i\nu) \mathcal{H}_3 \mathcal{B}_3^{-1} + \nu A^-(t)(1+i\nu)(g-ik) \mathcal{B}_3 \mathcal{H}_3^{-1} + \nu(1-i\nu) \\
& \times [\alpha_z(g-ik) + gA^-(t)] \left. \right\} \left\{ 2[\beta_z(i\nu'-2) \mathcal{B}_3'^{-1} - A^-(t)(1+i\nu') \mathcal{H}_3'^{-1}] \mathcal{P}_2' \right. \\
& \left. + \left(\frac{\partial}{\partial \beta_z} \right) \mathcal{P}_2' \right\}
\end{aligned} \tag{G.41}$$

A partir de chacune de ces expressions, nous arrivons à une formulation de

$$\begin{aligned}
R_{2p_0} = & -\frac{2\lambda}{\sqrt{3}} (16\pi)^2 C_{2p_0} \mathcal{B}_3^{i\nu-2} \mathcal{B}_3^{i\nu'-2} \mathcal{H}_3^{-i\nu-1} \mathcal{H}_3^{-i\nu'-1} \\
& \times \left(\left\{ -ig\beta_z(1-i\nu')(2-i\nu') \mathcal{H}_3' \mathcal{B}_3'^{-1} + \nu' A^-(1+i\nu')(g-ik') \mathcal{B}_3' \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \\
& + \nu'(1-i\nu') [\beta_z(g-ik') + gA^-(t)] \left. \right\} \left\{ 2[\alpha_z(i\nu-2) \mathcal{B}_3^{-1} - A^-(t)(1+i\nu) \mathcal{H}_3^{-1}] \mathcal{P}_2 \right. \\
& + \left(\frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \mathcal{P}_2 \left. \right\} + \left\{ -ig\alpha_z(1-i\nu)(2-i\nu) \mathcal{H}_3 \mathcal{B}_3^{-1} + \nu A^-(t)(1+i\nu)(g-ik) \mathcal{B}_3 \mathcal{H}_3^{-1} \right. \\
& + \nu(1-i\nu) [\alpha_z(g-ik) + gA^-(t)] \left. \right\} \left\{ 2[\beta_z(i\nu'-2) \mathcal{B}_3'^{-1} - A^-(t)(1+i\nu') \mathcal{H}_3'^{-1}] \mathcal{P}_2' \right. \\
& \left. + \left(\frac{\partial}{\partial \beta_z} \right) \mathcal{P}_2' \right\} \left. \right)
\end{aligned} \tag{G.42}$$

où l'on a

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{B}_3 = \alpha^2 + g^2 \quad \mathcal{B}'_3 = \beta^2 + g^2 \\ \mathcal{H}_3 = \mathcal{B}_3 - 2(\vec{\alpha} \cdot \vec{k} + igk) \quad \mathcal{H}'_3 = \mathcal{B}'_3 - 2(\vec{\beta} \cdot \vec{k}' + igk') \\ C_{2p_0} = \frac{\exp\left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu')\right]}{8\pi^4} \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') g^5 \end{array} \right. \quad (\text{G.43})$$

Procédons encore de la même manière pour $R_{2p_{\pm}}$ qui est la somme des deux quantités R_{2p_+} et R_{2p_-}

$$\begin{aligned} R_{2p_{\pm}} &= \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\ &\quad \times \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2) \\ &\quad \times \left[\varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \\ &= R_{2p_+} + R_{2p_-} \end{aligned} \quad (\text{G.44})$$

R_{2p_+} s'écrit comme

$$\begin{aligned} R_{2p_+} &= \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\ &\quad \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \\ &\quad + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \\ &\quad + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \\ &\quad + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \end{aligned} \quad (\text{G.45})$$

R_{2p_-} s'écrit comme

$$\begin{aligned}
R_{2p_-} = & \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
& \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2)
\end{aligned} \tag{G.46}$$

A ce stade, on remarque que le premier terme de l'accolade de R_{2p_+} est identique au quatrième terme de R_{2p_-} dans l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$. Il en va de même pour le deuxième terme de R_{2p_+} et le troisième de R_{2p_-} , le troisième de R_{2p_+} et le second de R_{2p_-} ainsi que le dernier de R_{2p_+} et le premier de R_{2p_-} . Dans ce cas, $R_{2p_{\pm}}$ devient

$$\begin{aligned}
R_{2p_{\pm}} = & \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
& \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \\
& + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2)
\end{aligned} \tag{G.47}$$

Divisons cette dernière expression en quatre intégrales telles que

$$R_{2p_{\pm}} = \frac{\lambda}{\sqrt{3}} (R_{2p_{\pm}}^1 + R_{2p_{\pm}}^2 + R_{2p_{\pm}}^3 + R_{2p_{\pm}}^4) \tag{G.48}$$

Intéressons-nous à $R_{2p_{\pm}}^1$ qui s'écrit comme

$$\begin{aligned}
R_{2p_{\pm}}^1 = & \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i\vec{A}^-(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \right] \\
& \times \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2)
\end{aligned} \tag{G.49}$$

D'après les expressions des fonctions d'onde (6.2), il vient

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^1 &= (2\pi)^{-4} \exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right] \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') g^5 \\
&\quad \times \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \exp \left[-i \left(\vec{A}^-(t) + \vec{k} \right) \cdot \vec{r}_1 - i \left(\vec{A}^-(t) + \vec{k}' \right) \cdot \vec{r}_2 \right] \\
&\quad \exp[-g(r_1 + r_2)] {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) {}_1F_1 \left(i\nu'; 1; ik'r_1 + i\vec{k}' \cdot \vec{r}_1 \right) \\
&\quad r_1 \cos \theta_1 r_1 \sin \theta_1 \exp(-i\phi_1) r_2 \sin \theta_2 \exp(i\phi_2)
\end{aligned} \tag{G.50}$$

Posons $\mathcal{C}_{2p}^1 = (2\pi)^{-4} \exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right] \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') g^5$, séparons les facteurs dépendants de \vec{r}_1 de ceux dépendants de \vec{r}_2 en utilisant les quantités $\vec{\alpha}$ et $\vec{\beta}$

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^1 &= \mathcal{C}_{2p}^1 \int d\vec{r}_1 \exp \left[-i \left(\vec{A}^-(t) + \vec{k} \right) \cdot \vec{r}_1 - gr_1 \right] {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) \\
&\quad \times r_1^2 \cos \theta_1 \sin \theta_1 \exp(-i\phi_1) \\
&\quad \times \int d\vec{r}_2 \exp \left[-i \left(\vec{A}^-(t) + \vec{k}' \right) \cdot \vec{r}_2 - gr_2 \right] {}_1F_1 \left(i\nu'; 1; ik'r_1 + i\vec{k}' \cdot \vec{r}_1 \right) \\
&\quad \times r_2 \sin \theta_2 \exp(i\phi_2)
\end{aligned} \tag{G.51}$$

Développons le produit scalaire $\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1 = \alpha_x r_1 \sin \theta_1 \cos \phi_1 + \alpha_y r_1 \sin \theta_1 \sin \phi_1 + \alpha_z r_1 \cos \theta_1$. De cette dernière formule, nous pouvons tirer les expressions

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_x} \right) \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) = r_1 \sin \theta_1 \cos \phi_1 \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) \\ \left(\frac{\partial}{\partial \alpha_y} \right) \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) = -ir_1 \sin \theta_1 \sin \phi_1 \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) \\ \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) = r_1 \cos \theta_1 \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) \end{array} \right. \tag{G.52}$$

Si on développe $\exp(-i\phi_1) = \cos \phi_1 - i \sin \phi_1$, on voit apparaître dans (G.51)

$$\begin{aligned}
& r_1^2 \cos \theta_1 \sin \phi_1 \exp(-i\phi_1) \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) \\
&= r_1^2 \cos \theta_1 (r_1 \sin \theta_1 \cos \phi_1 - i r_1 \sin \theta_1 \sin \phi_1) \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1) \\
&= \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \left[i \frac{\partial}{\partial \alpha_x} + \frac{\partial}{\partial \alpha_y} \right] \exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1)
\end{aligned} \tag{G.53}$$

Si l'on regarde (G.51) que l'on décompose en un produit de deux intégrales telles que

$$R_{2p\pm}^1 = C_{2p\pm}^1 \times \mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1) \times \mathcal{I}_{2p\pm}^2(\vec{r}_2) \tag{G.54}$$

Il est donc possible de réécrire $\mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1)$ en vertu de (G.52) comme

$$\begin{aligned}
\mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1) &= \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \left[i \frac{\partial}{\partial \alpha_x} + \frac{\partial}{\partial \alpha_y} \right] \left(-\frac{\partial}{\partial g} \right) \int d\vec{r}_1 \frac{\exp(-i\vec{\alpha} \cdot \vec{r}_1 - g r_1)}{r_1} \\
&\quad \times {}_1F_1\left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1\right)
\end{aligned} \tag{G.55}$$

L'intégrale est connue, c'est une forme de Nordsieck et en utilisant les notations \mathcal{B}_3 et \mathcal{H}_3 nous pouvons réécrire l'équation précédente

$$\mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1) = \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \left[i \frac{\partial}{\partial \alpha_x} + \frac{\partial}{\partial \alpha_y} \right] \left(-\frac{\partial}{\partial g} \right) \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \tag{G.56}$$

Nous avons déjà calculé la dérivée par rapport à g (cf. Annexe C où dans cette dernière la dérivation est effectuée par rapport à Z_i)

$$\left(-\frac{\partial}{\partial g} \right) \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} = 2\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1} \right] \tag{G.57}$$

Dérivons cette dernière expression par rapport à y

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial}{\partial \alpha_y} 2\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1} \right] = \\
& 2 \left(\frac{\partial}{\partial \alpha_y} \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \right) \left[\dots \right] + 2\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \frac{\partial}{\partial \alpha_y} \left[\dots \right]
\end{aligned} \tag{G.58}$$

Regardons tout d'abord la dérivée du facteur $\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1}$

$$\frac{\partial}{\partial \alpha_y} \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} = 2\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left[-i\nu(\alpha_y - k_y) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \quad (\text{G.59})$$

Dérivons ensuite le terme entre crochets de (G.58)

$$\frac{\partial}{\partial \alpha_y} \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] = -2i\nu(\alpha_y - k_y)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_y g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \quad (\text{G.60})$$

En remplaçant (G.60) et (G.59) dans (G.58) il vient

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \alpha_y} 2\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] = \\ 4\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left\{ \left[-i\nu(\alpha_y - k_y) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \right. \\ \times \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] - i\nu(\alpha_y - k_y)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} \\ \left. - 2\alpha_y g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} \end{aligned} \quad (\text{G.61})$$

Il nous faut dériver (G.57) par rapport à α_x . Cette dérivée sera identique à l'expression précédente au changement y en x près. On a donc

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \alpha_x} 2\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] = \\ 4\mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left\{ \left[-i\nu(\alpha_x - k_x) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \right. \\ \times \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] - i\nu(\alpha_x - k_x)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} \\ \left. - 2\alpha_x g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} \end{aligned} \quad (\text{G.62})$$

Nous pouvons ainsi écrire $\mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1)$ sous la forme

$$\begin{aligned} \mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1) = 16\pi \left(i \frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left(i \left\{ \left[-i\nu(\alpha_x - k_x) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \right. \right. \\ \times \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] - i\nu(\alpha_x - k_x)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} \\ \left. \left. + 2\alpha_x g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} + \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \right) \end{aligned} \quad (\text{G.63})$$

Calculons à présent la dérivée par rapport à α_z . Pour cela, rappelons la dérivée du facteur $\mathcal{H}_3^{-i\nu}\mathcal{B}_3^{i\nu-1}$

$$\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z}\right)\mathcal{H}_3^{-i\nu}\mathcal{B}_3^{i\nu-1} = 2\mathcal{H}_3^{-i\nu}\mathcal{B}_3^{i\nu-1}\left[-i\nu(\alpha_z - k_z)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1}\right] \quad (\text{G.64})$$

Et celle du premier terme entre accolades de (G.63)

$$\begin{aligned} &\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z}\right)\left\{\left[-i\nu(\alpha_x - k_x)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_x(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1}\right]\right. \\ &\times\left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1}\right] - i\nu(\alpha_x - k_x)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-2} \\ &\left.+ 2\alpha_x g(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-2}\right\} = \\ &\left[2i\nu(\alpha_z - k_z)(\alpha_x - k_x)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_x\alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-2}\right] \\ &\times\left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1}\right] + \left[-i\nu(\alpha_x - k_x)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_x(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1}\right] \\ &\times\left[-2i\nu(\alpha_z - k_z)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_z g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-2}\right] + 4i\nu(\alpha_x - k_x) \\ &\times(\alpha_z - k_z)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-3} - 4\alpha_x\alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-3} \end{aligned} \quad (\text{G.65})$$

La dérivation de la seconde accolade de (G.63) est identique à la précédente en échangeant $x \longleftrightarrow y$

$$\begin{aligned} &\left(\frac{\partial}{\partial\alpha_z}\right)\left\{x \longleftrightarrow y\right\} = \\ &\left[2i\nu(\alpha_z - k_z)(\alpha_y - k_y)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_y\alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-2}\right] \\ &\times\left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1}\right] + \left[-i\nu(\alpha_y - k_y)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_y(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1}\right] \\ &\times\left[-2i\nu(\alpha_z - k_z)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_z g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-2}\right] + 4i\nu(\alpha_y - k_y) \\ &\times(\alpha_z - k_z)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-3} - 4\alpha_y\alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-3} \end{aligned} \quad (\text{G.66})$$

En vertu de (G.66), (G.65) et (G.64) nous pouvons finalement réécrire (G.63)

$$\begin{aligned}
\mathcal{I}_{2p\pm}^1(\vec{r}_1) = & 32i\pi\mathcal{H}_3^{-i\nu}\mathcal{B}_3^{i\nu-1} \left(\left[-i\nu(\alpha_z - k_z)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1} \right] \right. \\
& \times \left[i \left\{ \left[-i\nu(\alpha_x - k_x)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_x(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1} \right] \left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} \right. \right. \right. \\
& + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1} \left. \right] - i\nu(\alpha_x - k_x)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_x g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-2} \Big\} \\
& + \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \Big] + i \left\{ \left[i\nu(\alpha_z - k_z)(\alpha_x - k_x)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_x\alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-2} \right] \right. \\
& \times \left[i\nu(g - ik)\mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-1} \right] + \left[-i\nu(\alpha_x - k_x)\mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_x(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-1} \right] \\
& \times \left[-2i\nu(\alpha_z - k_z)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-2} - 2\alpha_z g(1 - i\nu)\mathcal{B}_3^{-2} \right] + 4i\nu(\alpha_x - k_x) \\
& \left. \times (\alpha_z - k_z)(g - ik)\mathcal{H}_3^{-3} - 4\alpha_x\alpha_z(i\nu - 1)\mathcal{B}_3^{-3} \right\} + \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \Big) \\
& \tag{G.67}
\end{aligned}$$

Regardons à présent la deuxième intégrale de (G.54), nous pouvons directement la réécrire comme

$$\mathcal{I}_{2p\pm}^2(\vec{r}_2) = 4\pi \left[i \frac{\partial}{\partial \beta_x} - \frac{\partial}{\partial \beta_y} \right] \left(-\frac{\partial}{\partial g} \right) \mathcal{H}_3'^{-i\nu} \mathcal{B}_3'^{i\nu-1} \tag{G.68}$$

Cette dernière expression est à rapprocher de (G.56) et son résultat est à rapprocher de (G.63)

$$\begin{aligned}
\mathcal{I}_{2p\pm}^2(\vec{r}_2) = & 16\pi\mathcal{H}_3'^{-i\nu'}\mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \left(i \left\{ \left[-i\nu'(\beta_x - k'_x)\mathcal{H}_3'^{-1} + \beta_x(i\nu' - 1)\mathcal{B}_3'^{-1} \right] \right. \right. \\
& \times \left[i\nu'(g - ik')\mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu')\mathcal{B}_3'^{-1} \right] - i\nu'(\beta_x - k'_x)(g - ik')\mathcal{H}_3'^{-2} \\
& + \beta_x g(i\nu' - 1)\mathcal{B}_3'^{-2} \Big\} - \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \Big) \\
& \tag{G.69}
\end{aligned}$$

A partir des expressions (G.67) et (G.69) nous pouvons déduire une expression de $R_{2p\pm}^1$ en utilisant les simplifications ci-après

$$\begin{aligned}
\alpha_z - k_z &= A_z(t) & \beta_z - k'_z &= A_z(t) \\
\alpha_y - k_y &= 0 & \beta_y - k'_y &= 0 \\
\alpha_x - k_x &= 0 & \beta_z - k'_z &= 0
\end{aligned} \tag{G.70}$$

Il vient donc

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^1 = & C_{2p\pm}^1 512i\pi^2 \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-i\nu'} \mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \\
& \left(\left\{ \left[-i\nu A_z^-(t) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_z(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \left[i \{ k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} \right. \right. \right. \\
& + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] + k_x g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \} + \{ x \longleftrightarrow y \} \Big] + i \left\{ \left[-k_x \alpha_z(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right] \right. \\
& \times \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] + k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \left[-i\nu A_z^-(t)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} \right. \\
& \left. \left. - \alpha_z g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \right] - 2k_x k_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-3} \right\} + \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \Big\} \\
& \times \left\{ i \left(k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \right. \\
& + k'_x g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big) - k'_y(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \\
& \left. \left. + k'_y g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right\} \right)
\end{aligned} \tag{G.71}$$

Regardons à présent la seconde intégrale $R_{2p_0}^2$, son résultat est à rapprocher de celui de $R_{2p_0}^1$ sauf qu'il faut intervertir k en k' . Ainsi, nous pouvons directement déduire

$$\begin{aligned}
 R_{2p_{\pm}}^2 = & C_{2p_{\pm}}^1 512i\pi^2 \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-i\nu'} \mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \\
 & \left(\left\{ \left[-i\nu' A_z^-(t) \mathcal{H}_3'^{-1} + \beta_z(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \right] \left[i \{ k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \right. \\
 & \quad \left. \left. + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1} \right] + k'_x g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \} + \{ x \longleftrightarrow y \} \right] + i \left\{ \left[-k'_x \beta_z(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right] \right. \\
 & \quad \times \left[i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1} \right] + k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \left[-i\nu' A_z^-(t)(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-2} \right. \\
 & \quad \left. \left. - \beta_z g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-2} \right] - 2k'_x k'_y(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-3} \right\} + \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \left. \right\} \\
 & \times \left\{ i \left(k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \right. \\
 & \quad \left. \left. + k_x g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right) - k_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \\
 & \quad \left. \left. + k_y g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} \right)
 \end{aligned} \tag{G.72}$$

Regardons à présent la troisième intégrale $R_{2p_0}^3$, son résultat est à rapprocher de celui de $R_{2p_0}^2$ sauf que les moments magnétiques sont opposés dans chaque cas. Ceci va se manifester par un signe « - » dans l'expression des dérivées par rapport à α_x et α_y . Au final, l'expression de $R_{2p_0}^3$ va être identique à celle de $R_{2p_0}^2$ sauf que les termes d'échange $x \longleftrightarrow y$ seront précédés d'un « - »

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^3 = & C_{2p\pm}^1 512i\pi^2 \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-i\nu'} \mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \\
& \left(\left\{ \left[-i\nu' A_z^-(t) \mathcal{H}_3'^{-1} + \beta_z(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \right] \left[i \{ k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \right. \\
& + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] + k'_x g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \} - \{ x \longleftrightarrow y \} \Big] + i \left\{ \left[-k'_x \beta_z(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right] \right. \\
& \times \left[i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1} \right] + k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \left[-i\nu' A_z^-(t)(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-2} \right. \\
& \left. \left. - \beta_z g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-2} \right] - 2k'_x k'_y(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-3} \right\} - \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \Big\} \\
& \times \left\{ i \left(k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \right. \\
& + k_x g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big) - k_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \\
& \left. \left. + k_y g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} \right)
\end{aligned} \tag{G.73}$$

De la même manière pour R_{2p0}^4 qui va être identique à R_{2p0}^1 au signe « - » près

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^4 = & C_{2p\pm}^1 512i\pi^2 \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-i\nu'} \mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \\
& \left(\left\{ \left[-i\nu A_z^-(t) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_z(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \left[i \{ k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} \right. \right. \right. \\
& \left. \left. \left. + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] + k_x g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} - \{x \longleftrightarrow y\} \right) + i \left\{ \left[-k_x \alpha_z(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right] \right. \\
& \times \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] + k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \left[-i\nu A_z^-(t)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} \right. \\
& \left. \left. - \alpha_z g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \right] - 2k_x k_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-3} \right\} - \left\{ x \longleftrightarrow y \right\} \Bigg\} \\
& \times \left\{ i \left(k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \right. \\
& \left. \left. + k'_x g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right) - k'_y(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \\
& \left. \left. + k'_y g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right\} \right)
\end{aligned} \tag{G.74}$$

Afin de calculer $R_{2p\pm}$, commençons par sommer R_{2p0}^1 et R_{2p0}^4 car pour ces intégrales, les termes d'échange $x \longleftrightarrow y$ vont se compenser exactement

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^1 + R_{2p0}^4 &= C_{2p\pm}^1 1024i\pi^2 \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-i\nu'} \mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \\
&\left(\left\{ \left[-i\nu A_z^-(t) \mathcal{H}_3^{-1} + \alpha_z(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \left[i \{ k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} \right. \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] + k_x g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \} \right] + i \left\{ \left[-k_x \alpha_z(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right] \right. \\
&\quad \left. \times \left[i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1} \right] + k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \left[-i\nu A_z^-(t)(g - ik) \mathcal{H}_3^{-2} \right. \right. \\
&\quad \left. \left. - \alpha_z g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-2} \right] - 2k_x k_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-3} \} \right\} \right) \\
&\times \left\{ i \left(k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + k'_x g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right) - k'_y(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \\
&\quad \left. \left. + k'_y g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right\} \right) \\
&\hspace{15em} (G.75)
\end{aligned}$$

De la même manière pour la somme de R_{2p0}^2 et R_{2p0}^3

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm}^2 + R_{2p0}^3 &= C_{2p\pm}^1 1024i\pi^2 \mathcal{H}_3^{-i\nu} \mathcal{B}_3^{i\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-i\nu'} \mathcal{B}_3'^{i\nu'-1} \\
&\left(\left\{ \left[-i\nu' A_z^-(t) \mathcal{H}_3'^{-1} + \beta_z(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \right] \left[i \{ k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1} \right] + k'_x g(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \} \right] + i \left\{ \left[-k'_x \beta_z(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right] \right. \\
&\quad \left. \times \left[i\nu'(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-1} \right] + k'_x(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \left[-i\nu' A_z^-(t)(g - ik') \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \\
&\quad \left. \left. - \beta_z g(1 - i\nu') \mathcal{B}_3'^{-2} \right] - 2k'_x k'_y(i\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-3} \right\} \right\} \\
&\times \left\{ i \left(k_x(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + k_x g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right) - k_y(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [i\nu(g - ik) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - i\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \\
&\quad \left. \left. + k_y g(i\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right\} \right)
\end{aligned} \tag{G.76}$$

Au final, en utilisant ces deux dernières expressions dans (G.48) il vient

$$\begin{aligned}
R_{2p\pm} = & -\frac{2\lambda}{\sqrt{3}} 1024\pi^2 C_{2p\pm} \mathcal{B}_3^{\text{i}\nu-1} \mathcal{B}_3^{\text{i}\nu'-1} \mathcal{H}_3^{-\text{i}\nu} \mathcal{H}_3'^{-\text{i}\nu'} \\
& \left(\left\{ \left[-\text{i}\nu A_z^-(t) \mathcal{H}_3^{-1} + (k_z + A_z^-(t))(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \left[k_x(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [\text{i}\nu(g - \text{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} \right. \right. \right. \\
& + g(1 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] + k_x g(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big] + \left[-k_x(k_z + A_z^-(t))(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right] \\
& \times [\text{i}\nu(g - \text{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] + k_x(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [-\text{i}\nu A_z^-(t)(g - \text{i}k) \mathcal{H}_3^{-2} \\
& - (k_z + A_z^-(t))g(1 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-2}] - 2k_x k_y(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-3} \Big\} \\
& \times \left\{ \text{i} \left(k'_x(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [\text{i}\nu'(g - \text{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \right. \\
& + k'_x g(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big) - k'_y(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [\text{i}\nu'(g - \text{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \\
& + k'_y g(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big\} \\
& + \\
& \left\{ \left[-\text{i}\nu' A_z^-(t) \mathcal{H}_3'^{-1} + (k'_z + A_z^-(t))(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \right] \left[k'_x(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [\text{i}\nu'(g - \text{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \\
& + g(1 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] + k'_x g(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big] + \left[-k'_x(k'_z + A_z^-(t))(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right] \\
& \times [\text{i}\nu'(g - \text{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] + k'_x(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [-\text{i}\nu' A_z^-(t)(g - \text{i}k') \mathcal{H}_3'^{-2} \\
& - (k'_z + A_z^-(t))g(1 - \text{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-2}] - 2k'_x k'_y(\text{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-3} \Big\} \\
& \times \left\{ \text{i} \left(k_x(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [\text{i}\nu(g - \text{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \right. \\
& + k_x g(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big) - k_y(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [\text{i}\nu(g - \text{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - \text{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \\
& + k_y g(\text{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big\} \Bigg)
\end{aligned}
\tag{G.77}$$

avec dans ce cas

$$C_{2p_{\pm}} = \frac{\exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right]}{(2\pi)^4} \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') g^5 \quad (\text{G.78})$$

A l'aide de chacune des expressions (G.20), (G.42) et (G.77) nous pouvons déduire une expression générale de (G.2) que, par simplicité nous mettons sous la forme

$$R = N(1 + \lambda^2)^{-1/2} \exp \left[\frac{\pi}{2}(\nu + \nu') \right] \Gamma(1 - i\nu) \Gamma(1 - i\nu') \\ \times \left[\mathcal{C}_1 \mathcal{T}_1 + \mathcal{C}_2 \mathcal{T}_2 + \mathcal{C}_3 \mathcal{T}_3 \right] \quad (\text{G.79})$$

où l'on a

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{C}_1 = \frac{32}{\pi^2} \mathcal{N}(ab)^{3/2} \\ \mathcal{C}_2 = -\frac{64\lambda g^5}{\pi^2 \sqrt{3}} \\ \mathcal{C}_3 = -\frac{2^7 \lambda g^5}{\pi^2 \sqrt{3}} \end{array} \right. \quad (\text{G.80})$$

Et chacun des termes

$$\begin{aligned}
\mathcal{T}_1 = & \mathcal{B}_1^{\mathrm{i}\nu-2} \mathcal{B}_1^{\mathrm{i}\nu'-2} \mathcal{H}_1^{-\mathrm{i}\nu-1} \mathcal{H}_1'^{-\mathrm{i}\nu'-1} \\
& \times \left\{ \left[b(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{H}_1' + \mathrm{i}\nu'(b - \mathrm{i}k') \mathcal{B}_1' \right] \left[-\mathrm{i}a(k_z + A_z^-(t))(1 - \mathrm{i}\nu)(2 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_1^{-1} \mathcal{H}_1 \right. \right. \\
& + \nu(1 + \mathrm{i}\nu) A_z^-(t)(a - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_1^{-1} \mathcal{B}_1 + \nu(1 - \mathrm{i}\nu) [(k_z + A_z^-(t))(a - \mathrm{i}k) + a A_z^-(t)] \\
& + \left[a(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{H}_1 + \mathrm{i}\nu(a - \mathrm{i}k) \mathcal{B}_1 \right] \left[-\mathrm{i}b(k'_z + A_z^-(t))(1 - \mathrm{i}\nu')(2 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_1'^{-1} \mathcal{H}_1' \right. \\
& + \nu'(1 + \mathrm{i}\nu') A_z^-(t)(b - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_1'^{-1} \mathcal{B}_1' + \nu'(1 - \mathrm{i}\nu') [(k'_z + A_z^-(t))(b - \mathrm{i}k') + b A_z^-(t)] \left. \right] \left. \right\} \\
& + \mathcal{B}_2^{\mathrm{i}\nu-2} \mathcal{B}_2^{\mathrm{i}\nu'-2} \mathcal{H}_2^{-\mathrm{i}\nu-1} \mathcal{H}_2'^{-\mathrm{i}\nu'-1} \\
& \times \left\{ \left[b(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{H}_2 + \mathrm{i}\nu(b - \mathrm{i}k) \mathcal{B}_2 \right] \left[-\mathrm{i}a(k'_z + A_z^-(t))(1 - \mathrm{i}\nu')(2 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_2'^{-1} \mathcal{H}_2' \right. \right. \\
& + \nu'(1 + \mathrm{i}\nu') A_z^-(t)(a - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_2'^{-1} \mathcal{B}_2' + \nu'(1 - \mathrm{i}\nu') [(k'_z + A_z^-(t))(a - \mathrm{i}k') + a A_z^-(t)] \left. \right] \\
& + \left[a(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{H}_2' + \mathrm{i}\nu'(a - \mathrm{i}k') \mathcal{B}_2' \right] \left[-\mathrm{i}b(k_z + A_z^-(t))(1 - \mathrm{i}\nu)(2 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_2^{-1} \mathcal{H}_2 \right. \\
& + \nu(1 + \mathrm{i}\nu) A_z^-(t)(b - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_2^{-1} \mathcal{B}_2 + \nu(1 - \mathrm{i}\nu) [(k_z + A_z^-(t))(b - \mathrm{i}k) + b A_z^-(t)] \left. \right] \left. \right\} \\
& \quad \quad \quad (\text{G.81})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\mathcal{T}_2 = & \mathcal{B}_3^{\mathrm{i}\nu-2} \mathcal{B}_3^{\mathrm{i}\nu'-2} \mathcal{H}_3^{-\mathrm{i}\nu-1} \mathcal{H}_3'^{-\mathrm{i}\nu'-1} \\
& \times \left(\left\{ -\mathrm{i}g\beta_z(1 - \mathrm{i}\nu')(2 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{H}_3' \mathcal{B}_3'^{-1} + \nu' A^-(1 + \mathrm{i}\nu')(g - \mathrm{i}k') \mathcal{B}_3' \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \\
& + \nu'(1 - \mathrm{i}\nu') [\beta_z(g - \mathrm{i}k') + g A^-] \left. \right\} \left\{ 2[\alpha_z(\mathrm{i}\nu - 2) \mathcal{B}_3^{-1} - A^-(1 + \mathrm{i}\nu) \mathcal{H}_3^{-1}] \mathcal{P}_2 \right. \\
& + \left(\frac{\partial}{\partial \alpha_z} \right) \mathcal{P}_2 \left. \right\} + \left\{ -\mathrm{i}g\alpha_z(1 - \mathrm{i}\nu)(2 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{H}_3 \mathcal{B}_3^{-1} + \nu A^-(1 + \mathrm{i}\nu)(g - \mathrm{i}k) \mathcal{B}_3 \mathcal{H}_3^{-1} \right. \\
& + \nu(1 - \mathrm{i}\nu) [\alpha_z(g - \mathrm{i}k) + g A^-] \left. \right\} \left\{ 2[\beta_z(\mathrm{i}\nu' - 2) \mathcal{B}_3'^{-1} - A^-(1 + \mathrm{i}\nu') \mathcal{H}_3'^{-1}] \mathcal{P}_2' \right. \\
& + \left(\frac{\partial}{\partial \beta_z} \right) \mathcal{P}_2' \left. \right\} \left. \right) \\
& \quad \quad \quad (\text{G.82})
\end{aligned}$$

et enfin

$$\begin{aligned}
\mathcal{T}_3 = & \mathcal{B}_3'^{\nu'-1} \mathcal{H}_3^{-\nu'} \mathcal{H}_3'^{-\nu'} \\
& \left(\left\{ \left[-\mathrm{i}\nu A_z^-(t) \mathcal{H}_3^{-1} + (k_z + A_z^-(t))(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} \right] \left[k_x(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [\mathrm{i}\nu(g - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} \right. \right. \right. \\
& + g(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] + k_x g(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big] + \left[-k_x(k_z + A_z^-(t))(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \right] \\
& \times [\mathrm{i}\nu(g - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] + k_x(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [-\mathrm{i}\nu A_z^-(t)(g - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_3^{-2} \\
& - (k_z + A_z^-(t))g(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-2}] - 2k_x k_y(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-3} \Big\} \\
& \times \left\{ \mathrm{i} \left(k'_x(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [\mathrm{i}\nu'(g - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \right. \right. \\
& + k'_x g(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big) - k'_y(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [\mathrm{i}\nu'(g - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] \\
& + k'_y g(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big\} \\
& + \\
& \left\{ \left[-\mathrm{i}\nu' A_z^-(t) \mathcal{H}_3'^{-1} + (k'_z + A_z^-(t))(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} \right] \left[k'_x(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [\mathrm{i}\nu'(g - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} \right. \right. \\
& + g(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] + k'_x g(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \Big] + \left[-k'_x(k'_z + A_z^-(t))(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-2} \right] \\
& \times [\mathrm{i}\nu'(g - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_3'^{-1} + g(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-1}] + k'_x(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-1} [-\mathrm{i}\nu' A_z^-(t)(g - \mathrm{i}k') \mathcal{H}_3'^{-2} \\
& - (k'_z + A_z^-(t))g(1 - \mathrm{i}\nu') \mathcal{B}_3'^{-2}] - 2k'_x k'_y(\mathrm{i}\nu' - 1) \mathcal{B}_3'^{-3} \Big\} \\
& \times \left\{ \mathrm{i} \left(k_x(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [\mathrm{i}\nu(g - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \right. \right. \\
& + k_x g(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big) - k_y(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-1} [\mathrm{i}\nu(g - \mathrm{i}k) \mathcal{H}_3^{-1} + g(1 - \mathrm{i}\nu) \mathcal{B}_3^{-1}] \\
& + k_y g(\mathrm{i}\nu - 1) \mathcal{B}_3^{-2} \Big\} \Big)
\end{aligned}
\tag{G.83}$$

Annexe **H**

Intégrales sur t du développement Born II

LE but de cette annexe est de développer analytiquement les intégrales sur le temps des développements Born II avec et sans états intermédiaires.

H.1 Born II sans état intermédiaire

Il s'agit de regarder en détail l'intégrale sur le temps de (7.15)

$$I = \int_0^\tau dt E(t) A(t) \exp \left[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He})t \right] \quad (\text{H.1})$$

Sachant que l'on a $A(t) = - \int_0^\tau dt' E(t')$ et que pour un champ du type $E(t) = E_0 \sin(\omega t + \varphi) \sin^2 \left(\frac{\pi t}{\tau} \right)$ ce potentiel se calcule analytiquement sous la forme

$$A(t) = E_0 \left[\frac{\left(\frac{2\pi}{\tau}\right)^2 \cos \varphi}{2\omega \left[\omega^2 - \left(\frac{2\pi}{\tau}\right)^2\right]} + \frac{\cos(\omega t + \varphi)}{2\omega} - \frac{\cos \left[\left(\omega + \frac{2\pi}{\tau}\right)t + \varphi\right]}{4 \left(\omega + \frac{2\pi}{\tau}\right)} - \frac{\cos \left[\left(\omega - \frac{2\pi}{\tau}\right)t + \varphi\right]}{4 \left(\omega - \frac{2\pi}{\tau}\right)} \right] \quad (\text{H.2})$$

Posons à présent $B = E_0 \frac{\left(\frac{2\pi}{\tau}\right)^2 \cos \varphi}{2\omega \left[\omega^2 - \left(\frac{2\pi}{\tau}\right)^2\right]}$, $C = \frac{E_0}{2\omega}$, $D = -\frac{E_0}{4\omega^+}$, $E = -\frac{E_0}{4\omega^-}$ avec $\omega^+ = \omega + \frac{2\pi}{\tau}$, $\omega^- = \omega - \frac{2\pi}{\tau}$ ce qui nous permet de réécrire $A(t)$ sous la forme

$$A(t) = B + C \cos(\omega t + \varphi) + D \cos(\omega^+ t + \varphi) + E \cos(\omega^- t + \varphi) \quad (\text{H.3})$$

Et finalement, I devient en posant $\alpha = \varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He}$

$$I = B \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) + C \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) \cos(\omega t + \varphi) + D \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) \cos(\omega^+ t + \varphi) + E \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) \cos(\omega^- t + \varphi) \quad (\text{H.4})$$

Que nous pouvons découper en quatre intégrales

$$I = I_0 + I_1 + I_2 + I_3 \quad (\text{H.5})$$

A présent, nous allons développer la forme

$$I' = \int_0^t dt' E(t') \exp(i\alpha t') \quad (\text{H.6})$$

Sachant que l'on peut développer le champ comme $E(t) = E_0 \cos \varphi \sin^2 \left(\frac{\pi t}{\tau} \right) \sin(\omega t) + E_0 \sin \varphi \sin^2 \left(\frac{\pi t}{\tau} \right) \cos(\omega t)$; posons $\mathcal{A} = E_0 \cos \varphi$, $\mathcal{B} = E_0 \sin \varphi$, $\beta = \frac{\pi}{\tau}$ qui nous permet de réécrire I' comme

$$I' = \int_0^t dt' (\mathcal{A} \sin^2 \beta t' \sin \omega t' + \mathcal{B} \sin^2 \beta t' \cos \omega t') \exp(i\alpha t') \quad (\text{H.7})$$

En utilisant la forme exponentielle du sinus et du cosinus puis en intégrant, cette dernière expression devient

$$I' = \frac{\mathcal{A} + i\mathcal{B}}{8} \left[\frac{\exp(i\delta_1 t) - 1}{\delta_1} + \frac{\exp(i\delta_3 t) - 1}{\delta_3} - 2 \frac{\exp(i\delta_5 t) - 1}{\delta_5} \right] + \frac{\mathcal{A} - i\mathcal{B}}{8} \left[-\frac{\exp(i\delta_2 t) - 1}{\delta_2} + \frac{\exp(-i\delta_4 t) - 1}{\delta_4} + 2 \frac{\exp(i\delta_6 t) - 1}{\delta_6} \right] \quad (\text{H.8})$$

où l'on a utilisé

$$\begin{cases} \delta_1 = 2\beta + \omega + \alpha & \delta_1 = 2\beta + \delta_5 \\ \delta_2 = 2\beta - \omega + \alpha & \delta_2 = 2\beta + \delta_6 \\ \delta_3 = \omega + \alpha - 2\beta & \delta_3 = -2\beta + \delta_5 \\ \delta_4 = 2\beta + \omega - \alpha & \delta_4 = 2\beta - \delta_6 \\ \delta_5 = \alpha + \omega \\ \delta_6 = \alpha - \omega \end{cases} \quad (\text{H.9})$$

En posant $\mathcal{C}_1 = \frac{\mathcal{A} + i\mathcal{B}}{8}$, $\mathcal{D}_1 = \frac{\mathcal{A} - i\mathcal{B}}{8}$ mais aussi $\mathcal{E}_1 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\delta_1} - \frac{1}{\delta_3} + \frac{2}{\delta_5} \right]$ et $\mathcal{F}_1 = \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\delta_2} - \frac{1}{\delta_4} - \frac{2}{\delta_6} \right]$ et enfin $\mathcal{G}_1 = \mathcal{E}_1 + \mathcal{F}_1$, l'expression précédente de I' peut alors s'écrire comme

$$I' = \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\delta_1 t)}{\delta_1} + \frac{\exp(i\delta_3 t)}{\delta_3} - 2 \frac{\exp(i\delta_5 t)}{\delta_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\delta_2 t)}{\delta_2} + \frac{\exp(-i\delta_4 t)}{\delta_4} + 2 \frac{\exp(i\delta_6 t)}{\delta_6} \right] + \mathcal{G}_1 \quad (\text{H.10})$$

Cette dernière expression va nous être très utile puisqu'elle est à la base de chaque développement des intégrales sur t . Ainsi le premier terme I_0 de (H.4)

va s'exprimer directement à l'aide de (H.10). Pour le calcul de I_1 , évaluons à présent une intégrale du type

$$I'' = \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) \cos(\omega t + \varphi) \quad (\text{H.11})$$

En utilisant la forme exponentielle du cosinus, nous pouvons réécrire l'équation précédente sous la forme

$$I'' = \frac{\exp(i\varphi)}{2} \int_0^\tau dt E(t) \exp[i(\alpha + \omega)t] + \frac{\exp(-i\varphi)}{2} \int_0^\tau dt E(t) \exp[i(\alpha - \omega)t] \quad (\text{H.12})$$

Posons $\mathcal{K} = \frac{\exp(i\varphi)}{2}$ et $\mathcal{L} = \frac{\exp(-i\varphi)}{2}$ mais également $\varepsilon_1 = \alpha + \omega$ et $\varepsilon_2 = \alpha - \omega$. Ainsi, en vertu de (H.10) nous avons

$$\begin{aligned} \mathcal{K} \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\varepsilon_1 t) = \mathcal{K} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\mu_1\tau)}{\mu_1} + \frac{\exp(i\mu_3\tau)}{\mu_3} - 2 \frac{\exp(i\mu_5\tau)}{\mu_5} \right] \right. \\ \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\mu_2\tau)}{\mu_2} + \frac{\exp(-i\mu_4\tau)}{\mu_4} + 2 \frac{\exp(i\mu_6\tau)}{\mu_6} \right] + \mathcal{G}_2 \right\} \end{aligned} \quad (\text{H.13})$$

où l'on a

$$\begin{cases} \mu_1 = 2\beta + \delta_5 \\ \mu_2 = 2\beta + \delta_6 \\ \mu_3 = -2\beta + \delta_5 \\ \mu_4 = 2\beta - \delta_6 \\ \mu_5 = \varepsilon_1 + \omega \\ \mu_6 = \varepsilon_1 - \omega \end{cases} \quad (\text{H.14})$$

et $\mathcal{G}_2 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\mu_1} - \frac{1}{\mu_3} + \frac{2}{\mu_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\mu_2} - \frac{1}{\mu_4} - \frac{2}{\mu_6} \right]$. De la même manière, nous avons

$$\begin{aligned} \mathcal{L} \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\varepsilon_2 t) = \mathcal{L} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\nu_1\tau)}{\nu_1} + \frac{\exp(i\nu_3\tau)}{\nu_3} - 2 \frac{\exp(i\nu_5\tau)}{\nu_5} \right] \right. \\ \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\nu_2\tau)}{\nu_2} + \frac{\exp(-i\nu_4\tau)}{\nu_4} + 2 \frac{\exp(i\nu_6\tau)}{\nu_6} \right] + \mathcal{G}_3 \right\} \end{aligned} \quad (\text{H.15})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \nu_1 = 2\beta + \nu_5 \\ \nu_2 = 2\beta + \nu_6 \\ \nu_3 = -2\beta + \nu_5 \\ \nu_3 = 2\beta - \nu_6 \\ \nu_5 = \varepsilon_2 + \omega \\ \nu_6 = \varepsilon_2 - \omega \end{array} \right. \quad (\text{H.16})$$

et $\mathcal{G}_3 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\nu_1} - \frac{1}{\nu_3} + \frac{2}{\nu_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\nu_2} - \frac{1}{\nu_4} - \frac{2}{\nu_6} \right]$. Pour le calcul de I_2 , évaluons à présent une intégrale du type

$$I''' = \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) \cos(\omega^+ t + \varphi) \quad (\text{H.17})$$

que nous pouvons réécrire sous la forme

$$I''' = \mathcal{K} \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\kappa_1 t) + \mathcal{L} \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\kappa_2 t) \quad (\text{H.18})$$

où l'on a $\kappa_1 = \alpha + \omega^+$ et $\kappa_2 = \alpha - \omega^+$. A l'aide de (H.13) et (H.15) nous pouvons déduire une expression de I'''

$$\begin{aligned} I''' = \mathcal{K} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\rho_1\tau)}{\rho_1} + \frac{\exp(i\rho_3\tau)}{\rho_3} - 2\frac{\exp(i\rho_5\tau)}{\rho_5} \right] \right. \\ \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\rho_2\tau)}{\rho_2} + \frac{\exp(-i\rho_4\tau)}{\rho_4} + 2\frac{\exp(i\rho_6\tau)}{\rho_6} \right] + \mathcal{G}_4 \right\} + \\ \mathcal{L} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\lambda_1\tau)}{\lambda_1} + \frac{\exp(i\lambda_3\tau)}{\lambda_3} - 2\frac{\exp(i\lambda_5\tau)}{\lambda_5} \right] \right. \\ \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\lambda_2\tau)}{\lambda_2} + \frac{\exp(-i\lambda_4\tau)}{\lambda_4} + 2\frac{\exp(i\lambda_6\tau)}{\lambda_6} \right] + \mathcal{G}_5 \right\} \end{aligned} \quad (\text{H.19})$$

où l'on a

$$\left\{ \begin{array}{ll} \rho_1 = 2\beta + \rho_5 & \lambda_1 = 2\beta + \lambda_5 \\ \rho_2 = 2\beta + \rho_6 & \lambda_2 = 2\beta + \lambda_6 \\ \rho_3 = -2\beta + \rho_5 & \lambda_3 = -2\beta + \lambda_5 \\ \rho_3 = 2\beta - \rho_6 & \lambda_4 = 2\beta - \lambda_6 \\ \rho_5 = \kappa_1 + \omega & \lambda_5 = \kappa_2 + \omega \\ \rho_6 = \kappa_1 - \omega & \lambda_6 = \kappa_2 - \omega \end{array} \right. \quad (\text{H.20})$$

et $\mathcal{G}_4 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_3} + \frac{2}{\rho_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\rho_2} - \frac{1}{\rho_4} - \frac{2}{\rho_6} \right]$ mais aussi $\mathcal{G}_5 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_3} + \frac{2}{\lambda_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_4} - \frac{2}{\lambda_6} \right]$. En dernier lieu, une expression analytique de l'intégrale I_3 peut se déduire directement de

$$I'''' = \int_0^\tau dt E(t) \exp(i\alpha t) \cos(\omega^- t + \varphi) \quad (\text{H.21})$$

que l'on peut tirer de (H.19) en changeant κ_1 par $\zeta_1 = \alpha + \omega^-$ et κ_2 par $\zeta_2 = \alpha - \omega^-$. En résumé, d'après chaque expression de I' , I'' et I''' nous pouvons écrire

$$\begin{aligned}
I = & \mathcal{C}_I \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\delta_1\tau)}{\delta_1} + \frac{\exp(i\delta_3\tau)}{\delta_3} - 2\frac{\exp(i\delta_5\tau)}{\delta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\delta_2\tau)}{\delta_2} + \frac{\exp(-i\delta_4\tau)}{\delta_4} + 2\frac{\exp(i\delta_6\tau)}{\delta_6} \right] + \mathcal{G}_1 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{II} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\mu_1\tau)}{\mu_1} + \frac{\exp(i\mu_3\tau)}{\mu_3} - 2\frac{\exp(i\mu_5\tau)}{\mu_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\mu_2\tau)}{\mu_2} + \frac{\exp(-i\mu_4\tau)}{\mu_4} + 2\frac{\exp(i\mu_6\tau)}{\mu_6} \right] + \mathcal{G}_2 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{III} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\nu_1\tau)}{\nu_1} + \frac{\exp(i\nu_3\tau)}{\nu_3} - 2\frac{\exp(i\nu_5\tau)}{\nu_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\nu_2\tau)}{\nu_2} + \frac{\exp(-i\nu_4\tau)}{\nu_4} + 2\frac{\exp(i\nu_6\tau)}{\nu_6} \right] + \mathcal{G}_3 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{IV} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\rho_1\tau)}{\rho_1} + \frac{\exp(i\rho_3\tau)}{\rho_3} - 2\frac{\exp(i\rho_5\tau)}{\rho_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\rho_2\tau)}{\rho_2} + \frac{\exp(-i\rho_4\tau)}{\rho_4} + 2\frac{\exp(i\rho_6\tau)}{\rho_6} \right] + \mathcal{G}_4 \right\} + \\
& \mathcal{C}_V \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\lambda_1\tau)}{\lambda_1} + \frac{\exp(i\lambda_3\tau)}{\lambda_3} - 2\frac{\exp(i\lambda_5\tau)}{\lambda_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\lambda_2\tau)}{\lambda_2} + \frac{\exp(-i\lambda_4\tau)}{\lambda_4} + 2\frac{\exp(i\lambda_6\tau)}{\lambda_6} \right] + \mathcal{G}_5 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{VI} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\theta_1\tau)}{\theta_1} + \frac{\exp(i\theta_3\tau)}{\theta_3} - 2\frac{\exp(i\theta_5\tau)}{\theta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\theta_2\tau)}{\theta_2} + \frac{\exp(-i\theta_4\tau)}{\theta_4} + 2\frac{\exp(i\theta_6\tau)}{\theta_6} \right] + \mathcal{G}_6 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{VII} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\eta_1\tau)}{\eta_1} + \frac{\exp(i\eta_3\tau)}{\eta_3} - 2\frac{\exp(i\eta_5\tau)}{\eta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\eta_2\tau)}{\eta_2} + \frac{\exp(-i\eta_4\tau)}{\eta_4} + 2\frac{\exp(i\eta_6\tau)}{\eta_6} \right] + \mathcal{G}_7 \right\}
\end{aligned} \tag{H.22}$$

où chaque terme est défini par

$$\left\{ \begin{array}{llll} \delta_1 = 2\beta + \delta_5 & \mu_1 = 2\beta + \delta_5 & \nu_1 = 2\beta + \nu_5 & \rho_1 = 2\beta + \rho_5 \\ \delta_2 = 2\beta + \delta_6 & \mu_2 = 2\beta + \delta_6 & \nu_2 = 2\beta + \nu_6 & \rho_2 = 2\beta + \rho_6 \\ \delta_3 = -2\beta + \delta_5 & \mu_3 = -2\beta + \delta_5 & \nu_3 = -2\beta + \nu_5 & \rho_3 = -2\beta + \rho_5 \\ \delta_4 = 2\beta - \delta_6 & \mu_3 = 2\beta - \delta_6 & \nu_3 = 2\beta - \nu_6 & \rho_4 = 2\beta - \rho_6 \\ \delta_5 = \alpha + \omega & \mu_5 = \varepsilon_1 + \omega & \nu_5 = \varepsilon_2 + \omega & \rho_5 = \kappa_1 + \omega \\ \delta_6 = \alpha - \omega & \mu_6 = \varepsilon_1 - \omega & \nu_6 = \varepsilon_2 - \omega & \rho_6 = \kappa_1 - \omega \end{array} \right. \quad (\text{H.23})$$

$$\left\{ \begin{array}{lll} \lambda_1 = 2\beta + \lambda_5 & \theta_1 = 2\beta + \theta_5 & \eta_1 = 2\beta + \eta_5 \\ \lambda_2 = 2\beta + \lambda_6 & \theta_2 = 2\beta + \theta_6 & \eta_2 = 2\beta + \eta_6 \\ \lambda_3 = -2\beta + \lambda_5 & \theta_3 = -2\beta + \theta_5 & \eta_3 = -2\beta + \eta_5 \\ \lambda_4 = 2\beta - \lambda_6 & \theta_4 = 2\beta - \theta_6 & \eta_4 = 2\beta - \eta_5 \\ \lambda_5 = \kappa_2 + \omega & \theta_5 = \zeta_1 + \omega & \eta_5 = \zeta_2 + \omega \\ \lambda_6 = \kappa_2 - \omega & \theta_6 = \zeta_1 - \omega & \eta_6 = \zeta_2 - \omega \end{array} \right. \quad (\text{H.24})$$

mais également

$$\left\{ \begin{array}{ll} \alpha = \varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He} \\ \omega^+ = \omega + \frac{2\pi}{\tau} & \omega^- = \omega - \frac{2\pi}{\tau} \\ \varepsilon_1 = \alpha + \omega & \varepsilon_2 = \alpha - \omega \\ \kappa_1 = \alpha + \omega^+ & \kappa_2 = \alpha - \omega^+ \\ \zeta_1 = \alpha + \omega^- & \zeta_2 = \alpha - \omega^- \end{array} \right. \quad (\text{H.25})$$

et aussi

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{C}_I = E_0 \frac{\left(\frac{2\pi}{\tau}\right)^2 \cos \varphi}{2\omega \left[\omega^2 - \left(\frac{2\pi}{\tau}\right)^2\right]} \\ \mathcal{C}_{II} = \frac{E_0 \exp(i\varphi)}{4\omega} \\ \mathcal{C}_{III} = \frac{E_0 \exp(-i\varphi)}{4\omega} \\ \mathcal{C}_{IV} = -\frac{E_0 \exp(i\varphi)}{8\omega^+} \\ \mathcal{C}_V = -\frac{E_0 \exp(-i\varphi)}{8\omega^+} \\ \mathcal{C}_{VI} = -\frac{E_0 \exp(i\varphi)}{8\omega^-} \\ \mathcal{C}_{VII} = -\frac{E_0 \exp(-i\varphi)}{8\omega^-} \end{array} \right. \quad (\text{H.26})$$

enfin

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{G}_1 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\delta_1} - \frac{1}{\delta_3} + \frac{2}{\delta_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\delta_2} - \frac{1}{\delta_4} - \frac{2}{\delta_6} \right] \\ \mathcal{G}_2 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\mu_1} - \frac{1}{\mu_3} + \frac{2}{\mu_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\mu_2} - \frac{1}{\mu_4} - \frac{2}{\mu_6} \right] \\ \mathcal{G}_3 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\nu_1} - \frac{1}{\nu_3} + \frac{2}{\nu_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\nu_2} - \frac{1}{\nu_4} - \frac{2}{\nu_6} \right] \\ \mathcal{G}_4 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_3} + \frac{2}{\rho_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\rho_2} - \frac{1}{\rho_4} - \frac{2}{\rho_6} \right] \\ \mathcal{G}_5 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_3} + \frac{2}{\lambda_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_4} - \frac{2}{\lambda_6} \right] \\ \mathcal{G}_6 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\theta_1} - \frac{1}{\theta_3} + \frac{2}{\theta_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\theta_2} - \frac{1}{\theta_4} - \frac{2}{\theta_6} \right] \\ \mathcal{G}_7 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\eta_1} - \frac{1}{\eta_3} + \frac{2}{\eta_5} \right] + \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\eta_2} - \frac{1}{\eta_4} - \frac{2}{\eta_6} \right] \end{array} \right. \quad (\text{H.27})$$

H.2 Born II avec état intermédiaire

Le but de cette section est de calculer l'intégrale temporelle de (7.23)

$$\begin{aligned} I &= \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} - \varepsilon_{He^\oplus})t] \\ &\quad \times \int_0^t dt' E(t') \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^\oplus} - \varepsilon_{He})t'] \end{aligned} \quad (\text{H.28})$$

Nous allons à nouveau définir des changements de variable et réutiliser les mêmes notations que la section précédente. Pour cela, précisons que ces nouvelles notations n'ont, pour certaines, plus de lien avec la section précédente. Ainsi, posons $\mathcal{A} = E_0 \cos \varphi$, $\mathcal{B} = E_0 \sin \varphi$, $\beta = \frac{\pi}{\tau}$ et $\alpha = \varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^\oplus} - \varepsilon_{He}$, l'intégrale

$$I' = \int_0^t dt' E(t') \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^\oplus} - \varepsilon_{He})t'] \quad (\text{H.29})$$

s'écrit donc en fonction des changements de variables précédents et de (H.10)

$$\begin{aligned}
I' = & \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\delta_1 t)}{\delta_1} + \frac{\exp(i\delta_3 t)}{\delta_3} - 2 \frac{\exp(i\delta_5 t)}{\delta_5} \right] \\
& + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\delta_2 t)}{\delta_2} + \frac{\exp(-i\delta_4 t)}{\delta_4} + 2 \frac{\exp(i\delta_6 t)}{\delta_6} \right] + \mathcal{G}_1
\end{aligned} \tag{H.30}$$

avec

$$\begin{cases} \mathcal{C}_1 = \frac{\mathcal{A} + i\mathcal{B}}{8} \\ \mathcal{D}_1 = \frac{\mathcal{A} - i\mathcal{B}}{8} \\ \mathcal{E}_1 = \mathcal{C}_1 \left[-\frac{1}{\delta_1} - \frac{1}{\delta_3} + \frac{2}{\delta_5} \right] \\ \mathcal{F}_1 = \mathcal{D}_1 \left[\frac{1}{\delta_2} - \frac{1}{\delta_4} - \frac{2}{\delta_6} \right] \\ \mathcal{G}_1 = \mathcal{E}_1 + \mathcal{F}_1 \end{cases} \tag{H.31}$$

mais aussi

$$\begin{cases} \delta_1 = 2\beta + \delta_5 \\ \delta_2 = 2\beta + \delta_6 \\ \delta_3 = -2\beta + \delta_5 \\ \delta_4 = 2\beta - \delta_6 \\ \delta_5 = \alpha + \omega \\ \delta_6 = \alpha - \omega \end{cases} \tag{H.32}$$

L'expression (H.31) va nous permettre de calculer (H.28), cette dernière devenant en posant $\lambda = \varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He^\oplus}$

$$\begin{aligned}
I = \int_0^\tau dt \, E(t) \exp(i\lambda t) & \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\delta_1 t)}{\delta_1} + \frac{\exp(i\delta_3 t)}{\delta_3} - 2 \frac{\exp(i\delta_5 t)}{\delta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\delta_2 t)}{\delta_2} + \frac{\exp(-i\delta_4 t)}{\delta_4} + 2 \frac{\exp(i\delta_6 t)}{\delta_6} \right] + \mathcal{G}_1 \right\}
\end{aligned} \tag{H.33}$$

Ce qui nous donne en développant l'expression précédente

$$\begin{aligned}
I = & \frac{\mathcal{C}_1}{\delta_1} \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\lambda + \delta_1)t] + \frac{\mathcal{C}_1}{\delta_3} \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\lambda + \delta_3)t] \\
& - \frac{2\mathcal{C}_1}{\delta_5} \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\lambda + \delta_5)t] - \frac{\mathcal{D}_1}{\delta_2} \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\lambda + \delta_2)t] \\
& + \frac{\mathcal{D}_1}{\delta_4} \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\lambda - \delta_4)t] + \frac{2\mathcal{D}_1}{\delta_6} \int_0^\tau dt E(t) \exp [i(\lambda + \delta_6)t] \\
& + \mathcal{G}_1 \int_0^\tau dt E(t) \exp (i\lambda t)
\end{aligned} \tag{H.34}$$

Puis, utilisons successivement (H.30) pour calculer chaque intégrale de l'expression précédente. Nous pouvons alors donner une forme finale pour I

$$\begin{aligned}
I = & \mathcal{C}_I \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\varepsilon_1\tau)}{\varepsilon_1} + \frac{\exp(i\varepsilon_3\tau)}{\varepsilon_3} - 2 \frac{\exp(i\varepsilon_5\tau)}{\varepsilon_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\varepsilon_2\tau)}{\varepsilon_2} + \frac{\exp(-i\varepsilon_4\tau)}{\varepsilon_4} + 2 \frac{\exp(i\varepsilon_6\tau)}{\varepsilon_6} \right] + \mathcal{G}_1 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{II} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\zeta_1\tau)}{\zeta_1} + \frac{\exp(i\zeta_3\tau)}{\zeta_3} - 2 \frac{\exp(i\zeta_5\tau)}{\zeta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\zeta_2\tau)}{\zeta_2} + \frac{\exp(-i\zeta_4\tau)}{\zeta_4} + 2 \frac{\exp(i\zeta_6\tau)}{\zeta_6} \right] + \mathcal{G}_2 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{III} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\eta_1\tau)}{\eta_1} + \frac{\exp(i\eta_3\tau)}{\eta_3} - 2 \frac{\exp(i\eta_5\tau)}{\eta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\eta_2\tau)}{\eta_2} + \frac{\exp(-i\eta_4\tau)}{\eta_4} + 2 \frac{\exp(i\eta_6\tau)}{\eta_6} \right] + \mathcal{G}_3 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{IV} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\theta_1\tau)}{\theta_1} + \frac{\exp(i\theta_3\tau)}{\theta_3} - 2 \frac{\exp(i\theta_5\tau)}{\theta_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\theta_2\tau)}{\theta_2} + \frac{\exp(-i\theta_4\tau)}{\theta_4} + 2 \frac{\exp(i\theta_6\tau)}{\theta_6} \right] + \mathcal{G}_4 \right\} + \\
& \mathcal{C}_V \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\mu_1\tau)}{\mu_1} + \frac{\exp(i\mu_3\tau)}{\mu_3} - 2 \frac{\exp(i\mu_5\tau)}{\mu_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\mu_2\tau)}{\mu_2} + \frac{\exp(-i\mu_4\tau)}{\mu_4} + 2 \frac{\exp(i\mu_6\tau)}{\mu_6} \right] + \mathcal{G}_5 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{VI} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\nu_1\tau)}{\nu_1} + \frac{\exp(i\nu_3\tau)}{\nu_3} - 2 \frac{\exp(i\nu_5\tau)}{\nu_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\nu_2\tau)}{\nu_2} + \frac{\exp(-i\nu_4\tau)}{\nu_4} + 2 \frac{\exp(i\nu_6\tau)}{\nu_6} \right] + \mathcal{G}_6 \right\} + \\
& \mathcal{C}_{VII} \left\{ \mathcal{C}_1 \left[\frac{\exp(i\sigma_1\tau)}{\sigma_1} + \frac{\exp(i\sigma_3\tau)}{\sigma_3} - 2 \frac{\exp(i\sigma_5\tau)}{\sigma_5} \right] \right. \\
& \left. + \mathcal{D}_1 \left[-\frac{\exp(i\sigma_2\tau)}{\sigma_2} + \frac{\exp(-i\sigma_4\tau)}{\sigma_4} + 2 \frac{\exp(i\sigma_6\tau)}{\sigma_6} \right] + \mathcal{G}_7 \right\}
\end{aligned} \tag{H.35}$$

où chaque terme est défini tout d'abord par

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_1 = \lambda + \delta_1 \\ \lambda_2 = \lambda + \delta_2 \\ \lambda_3 = \lambda + \delta_3 \\ \lambda_4 = \lambda + \delta_4 \\ \lambda_5 = \lambda + \delta_5 \\ \delta_6 = \lambda + \delta_6 \end{array} \right. \quad (\text{H.36})$$

ensuite avec

$$\left\{ \begin{array}{llll} \varepsilon_1 = 2\beta + \varepsilon_5 & \zeta_1 = 2\beta + \zeta_5 & \eta_1 = 2\beta + \eta_5 & \theta_1 = 2\theta + \rho_5 \\ \varepsilon_2 = 2\beta + \varepsilon_6 & \zeta_2 = 2\beta + \zeta_6 & \eta_2 = 2\beta + \eta_6 & \theta_2 = 2\theta + \rho_6 \\ \varepsilon_3 = -2\beta + \varepsilon_5 & \zeta_3 = -2\beta + \zeta_5 & \eta_3 = -2\beta + \eta_5 & \theta_3 = -2\theta + \rho_5 \\ \varepsilon_4 = 2\beta - \varepsilon_6 & \zeta_4 = 2\beta - \zeta_6 & \eta_4 = 2\beta - \eta_6 & \theta_4 = 2\theta - \rho_6 \\ \varepsilon_5 = \lambda_1 + \omega & \zeta_5 = \lambda_3 + \omega & \eta_5 = \lambda_5 + \omega & \theta_5 = \lambda_2 + \omega \\ \varepsilon_6 = \lambda_1 - \omega & \zeta_6 = \lambda_3 - \omega & \eta_6 = \lambda_5 - \omega & \theta_6 = \lambda_2 - \omega \end{array} \right. \quad (\text{H.37})$$

et enfin par

$$\left\{ \begin{array}{lll} \mu_1 = 2\beta + \mu_5 & \nu_1 = 2\beta + \nu_5 & \sigma_1 = 2\beta + \sigma_5 \\ \mu_2 = 2\beta + \mu_6 & \nu_2 = 2\beta + \nu_6 & \sigma_2 = 2\beta + \sigma_6 \\ \mu_3 = -2\beta + \mu_5 & \nu_3 = -2\beta + \nu_5 & \sigma_3 = -2\beta + \sigma_5 \\ \mu_4 = 2\beta - \mu_6 & \nu_4 = 2\beta - \nu_6 & \sigma_4 = 2\beta - \sigma_5 \\ \mu_5 = \lambda_4 + \omega & \nu_5 = \lambda_6 + \omega & \sigma_5 = \lambda + \omega \\ \mu_6 = \lambda_4 - \omega & \nu_6 = \lambda_6 - \omega & \sigma_6 = \lambda - \omega \end{array} \right. \quad (\text{H.38})$$

Annexe I

Développements Born II

IL s'agit dans cette annexe de développer les recouvrements et couplages dipolaires intervenant dans les développements Born II.

I.1 Born II avec état intermédiaire

Nous devons développer l'élément de transition (cf. eq. (7.18))

$$M_1 = \int_0^\tau dt \left\langle \chi_f(t) \left| V(t) \right| \chi_{(1s, \vec{k})}(t) \right\rangle \quad (\text{I.1})$$

que nous pouvons réécrire par projection dans l'espace des configurations

$$M_1 = \int_0^\tau dt \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \chi_f^*(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \chi_{(1s, \vec{k})}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (\text{I.2})$$

en utilisant les fonctions d'onde suivantes

$$\begin{aligned}
\chi_f^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) &= N \left[\mathcal{C}_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1, t) \mathcal{C}_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2, t) + \mathcal{C}_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2, t) \mathcal{C}_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1, t) \right] \\
&= N \left[\psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^-(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^-(\vec{r}_1) \right] \\
&\quad \times \exp \left[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{\vec{k}'})t \right] \\
\chi_{(1s, \vec{k})}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) &= N_j \left[\mathcal{C}_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1, t) \chi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2, t) + \mathcal{C}_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2, t) \chi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1, t) \right] \\
&= N_j \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1) \right] \\
&\quad \times \exp \left[-i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}})t \right]
\end{aligned} \tag{I.3}$$

mais également la perturbation sous la forme $V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \vec{E}(t)$. Si on l'injecte ainsi que (I.3) dans (I.2) il vient

$$\begin{aligned}
M_1 &= \int_0^\tau dt \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 N \left[\psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_1) \right] \\
&\quad \times (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2) N_j \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1) \right] \\
&\quad \times E(t) \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He^{\oplus}})t \right]
\end{aligned} \tag{I.4}$$

On peut réécrire les intégrales spatiales de cette dernière expression en développant puis en regroupant les termes identiques dans l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$

$$\begin{aligned}
D_1 &= 2NN_j \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) + \\
&\quad \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1) + \\
&\quad \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) + \\
&\quad \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1)
\end{aligned} \tag{I.5}$$

Découpons cette dernière expression en quatre intégrales

$$D_1 = 2NN_j \left[I_1 + I_2 + I_3 + I_4 \right] \tag{I.6}$$

Regardons en détail la première intégrale

$$I_1 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.7})$$

La contibution de cette intégrale est nulle puisqu'elle calcule le couplage entre deux états du continuum et que nous négligeons arbitrairement ces processus. Regardons à présent la seconde intégrale

$$I_2 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.8})$$

L'étude du cas sans corrélations dans l'état intermédiaire ni final nous impose un choix asymptotiques de charges nucléaires, $Z_{k'} = Z_k^{\oplus} = 2$. Dans ce cas, l'intégrale sur \vec{r}_2 se résume à une fonction delta

$$\int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) = \delta(\vec{k} - \vec{k}') \quad (\text{I.9})$$

réduisant la contribution de I_2 à 0. Regardons la troisième intégrale

$$I_3 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.10})$$

comme nous avons $Z_k = Z_k^{\oplus} = 2$, l'intégrale sur \vec{r}_1 vaut 1 et il nous faut calculer le couplage

$$\begin{aligned} \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}^{\oplus}(\vec{r}_2) &= (2\pi)^{-3/2} \exp\left(\frac{\pi\nu'}{2}\right) \Gamma(1 - i\nu') \frac{Z_i^{\oplus 3/2}}{\sqrt{\pi}} \\ &\int d\vec{r}_2 \exp\left(-i\vec{k}' \cdot \vec{r} - Z_i^{\oplus} r_2\right) {}_1F_1\left(i\nu'; 1; i\vec{k}'r + i\vec{k}' \cdot \vec{r}\right) r_2 \cos \theta_2 \end{aligned} \quad (\text{I.11})$$

Or l'intégrale est exactement égale à $I_{\vec{k}}(t)$ calculée dans l'annexe D, d'où nous tirons l'expression suivante

$$\begin{aligned} \int d\vec{r}_2 \exp\left(-i\vec{k}' \cdot \vec{r} - Z_i^{\oplus} r_2\right) {}_1F_1\left(i\nu'; 1; i\vec{k}'r + i\vec{k}' \cdot \vec{r}\right) r_2 \cos \theta_2 &= \\ \frac{16i\pi k'_z}{\alpha'^3} \left(\frac{\alpha'}{\delta'}\right)^{i\nu'} (i\nu' - 1) \left[Z_i^{\oplus} (2 - i\nu') + \nu' (k' + iZ_i^{\oplus}) \left(\frac{\alpha'}{\delta'}\right) \right] \end{aligned} \quad (\text{I.12})$$

Or nous avons $\alpha' = k'^2 + Z_i^{\oplus 2} = (Z_i^{\oplus} + ik') (Z_i^{\oplus} - ik')$ et $\delta' = (Z_i^{\oplus} - ik')^2$ ce qui nous permet d'écrire

$$\frac{\alpha'}{\delta'} = \frac{Z_i^\oplus + ik'}{Z_i^\oplus - ik'} = \frac{\rho \exp(i\varphi')}{\rho \exp(-i\varphi')} = \exp(2i\varphi') \quad (\text{I.13})$$

où l'on a $\varphi' = \arctan\left(\frac{k'}{Z_i^\oplus}\right)$. Ainsi, nous pouvons écrire

$$Z_i^\oplus(2 - i\nu') + \nu'(k' + iZ_i^\oplus) \left(\frac{\alpha'}{\delta'}\right) = 2Z_i^\oplus - Z_{k'} \quad (\text{I.14})$$

Finalement, en vertu de (I.14) et (I.13), (I.12) se réécrit

$$\int d\vec{r}_2 (\dots) = \frac{16i\pi k'_z (2Z_i^\oplus - Z_{k'})}{\alpha'^3} \exp(-2\varphi'\nu')(i\nu' - 1) \quad (\text{I.15})$$

En injectant cette dernière expression dans (I.11) nous arrivons à une expression de I_3

$$I_3 = -i \frac{2^{5/2} Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i^\oplus - Z_{k'})}{\pi} \frac{k'_z}{\alpha'^3} \exp\left[\nu' \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi'\right)\right] \Gamma(2 - i\nu') \quad (\text{I.16})$$

Regardons la quatrième intégrale

$$I_4 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^\oplus(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \psi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.17})$$

où l'on voit apparaître explicitement le couplage entre deux états du continuum. Comme le cas précédent, nous allons directement négliger ce type de processus. Ainsi la seule contribution effective à D_1 viendra de I_3 et en injectant (I.16) dans (I.6) nous déduisons finalement une expression de D_1 que l'on remplace dans (I.4)

$$M_1 = -N N_j i \frac{2^{7/2} Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i^\oplus - Z_{k'})}{\pi} \frac{k'_z}{\alpha'^3} \exp\left[\nu' \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi'\right)\right] \Gamma(2 - i\nu') \\ \times \int_0^{\tau\pi} dt E(t) \exp[i(\varepsilon_{\vec{k}'} - \varepsilon_{He^\oplus})t] \quad (\text{I.18})$$

Il s'agit de développer une expression de

$$M_2 = \int_0^t dt' \left\langle \chi_{(1s, \vec{k})}(t') \middle| V(t') \middle| \chi_i(t') \right\rangle \quad (\text{I.19})$$

que l'on réécrit sous la forme

$$M_2 = \int_0^t dt' \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \chi_{(1s, \vec{k})}^*(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t') V(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t') \chi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t') \quad (\text{I.20})$$

A l'aide de la définition de $\chi_{(1s, \vec{k})}$ donnée en (I.3) et de celle qui suit

$$\chi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \exp(-i\varepsilon_{He}t) \quad (\text{I.21})$$

nous pouvons développer M_2 sous la forme

$$\begin{aligned} M_2 = & \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 N_j \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) \right] \\ & \times (r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \\ & \times \int_0^t dt' E(t') \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He\oplus} - i\varepsilon_{He})t'] \end{aligned} \quad (\text{I.22})$$

On peut réécrire les intégrales spatiales de cette dernière expression en développant puis en regroupant les termes identiques dans l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$

$$\begin{aligned} D_2 = 2 \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 N_j & \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \right. \\ & \left. + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \right] \end{aligned} \quad (\text{I.23})$$

que l'on peut découper en deux intégrales

$$D_2 = 2N_j [J_1 + J_2] \quad (\text{I.24})$$

Regardons en détail la première intégrale

$$J_1 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.25})$$

or on a déjà calculé l'intégrale sur \vec{r}_1 (cf. I.16), celle sur \vec{r}_2 peut s'écrire

$$\begin{aligned} \int d\vec{r}_2 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}(\vec{r}_2) &= \frac{Z_i^{\oplus 3/2}}{\sqrt{\pi}} \frac{Z_i^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \int d\vec{r}_2 \exp \left[- (Z_i^{\oplus} + Z_i) r_2 \right] \\ &= 8 \frac{(Z_i^{\oplus} Z_i)^{3/2}}{(Z_i^{\oplus} + Z_i)^3} \end{aligned} \quad (\text{I.26})$$

Ainsi, en injectant directement l'expression précédente avec (I.16) dans celle de J_1 nous arrivons à

$$J_1 = -i \frac{2^{11/2} Z_i^3 Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i - Z_k^{\oplus}) k_z}{\pi (Z_i^{\oplus} + Z_i)^3} \frac{1}{\alpha^3} \exp \left[\nu^{\oplus} \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi \right) \right] \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \quad (\text{I.27})$$

où l'on a $\nu^{\oplus} = \frac{Z_k^{\oplus}}{k}$, $Z_i = 1,6875$, $Z_i^{\oplus} = 2$, $Z_k^{\oplus} = 2$, $\alpha = Z_i^2 + k^2$ et $\varphi = \arctan \left(\frac{k}{Z_i} \right)$. A présent, regardons la deuxième intégrale

$$J_2 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) r_2 \cos \theta_2 \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.28})$$

Nous voyons apparaître dans ce cas le couplage explicite entre deux états de même symétrie s . Du fait des règles de sélection lors des transitions dipolaires électriques, ce couplage est nul. La seule contribution à M_2 va donc venir de J_1

$$M_2 = -i N_j \frac{2^{13/2} Z_i^3 Z_i^{\oplus 3/2} (2Z_i - Z_k^{\oplus}) k_z}{\pi (Z_i^{\oplus} + Z_i)^3} \frac{1}{\alpha^3} \exp \left[\nu^{\oplus} \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi \right) \right] \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \\ \times \int_0^t dt' E(t') \exp [i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}} - \varepsilon_{He})t'] \quad (\text{I.29})$$

I.2 Born II avec état intermédiaire et état fondamental amélioré

L'idée est ici d'utiliser l'état fondamental de J.N. Silverman *et al.* [157]

$$\chi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \simeq \frac{1}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left\{ \mathcal{N} \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right] \right. \\ \left. + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) \right. \right. \\ \left. \left. + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \right\} \exp(-i\varepsilon_{He}t) \quad (\text{I.30})$$

et de recalculer le facteur M_2 . Ainsi en utilisant l'expression précédente dans (I.19) nous parvenons à

$$\begin{aligned}
 M_2 = & \frac{N_j}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) \right] \\
 & r_1 \cos \theta_1 + r_2 \cos \theta_2 \left\{ \mathcal{N} \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right] \right. \\
 & \left. + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \left[\varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \right\} \\
 & \times \int_0^t dt' E(t') \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}} - i\varepsilon_{He})t' \right]
 \end{aligned} \tag{I.31}$$

et nous allons diviser les intégrations sur \vec{r}_1 et \vec{r}_2 comme suit

$$\begin{aligned}
 M_2 = & \frac{N_j}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left[J_{1s} + J_{2p_0} + J_{2p_{\pm}} \right] \\
 & \times \int_0^t dt' E(t') \exp \left[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}} - i\varepsilon_{He})t' \right]
 \end{aligned} \tag{I.32}$$

Commençons par étudier J_{1s} que l'on simplifie du fait de l'échange $\vec{r}_1 \longleftrightarrow \vec{r}_2$

$$\begin{aligned}
 J_{1s} = & 2\mathcal{N} \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) \right] \\
 & \times r_1 \cos \theta_1 \left[\varphi_{1s}(\vec{r}_1) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) + \varphi_{1s}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_1) \right]
 \end{aligned} \tag{I.33}$$

que l'on sous-divise encore en quatre intégrales

$$J_{1s} = 2\mathcal{N} [J_{1s}^1 + J_{1s}^2 + J_{1s}^3 + J_{1s}^4] \tag{I.34}$$

et débutons par

$$J_{1s}^1 = \int d\vec{r}_1 \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \tag{I.35}$$

Chacune des formes intégrales a déjà été calculée, à l'aide de (I.26) et (I.16) nous pouvons directement écrire

$$J_{1s}^1 = -i \frac{2^{11/2} (abZ_i^{\oplus})^{3/2} (2a - Z_k^{\oplus}) k_z}{\pi [\alpha_1 (Z_i^{\oplus} + b)]^3} \exp \left[\nu^{\oplus} \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_1 \right) \right] \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \tag{I.36}$$

où l'on a $a = 2,17621$, $b = 1,20152$, $Z_i^\oplus = 2$, $Z_k^\oplus = 2$, $\nu^\oplus = \frac{Z_k^\oplus}{k}$, $\varphi_1 = \arctan\left(\frac{k}{a}\right)$ et $\alpha_1 = a^2 + k^2$. Si l'on regarde en détail J_{1s}^2 , son expression est identique à J_{1s}^1 en interchangeant a et b . Nous déduisons facilement son expression

$$J_{1s}^2 = -i \frac{2^{11/2} (abZ_i^\oplus)^{3/2} (2b - Z_k^\oplus) k_z}{\pi [\alpha_2 (Z_i^\oplus + a)]^3} \exp\left[\nu^\oplus \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_2\right)\right] \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \quad (\text{I.37})$$

où l'on a $\varphi_2 = \arctan\left(\frac{k}{b}\right)$ et $\alpha_2 = b^2 + k^2$. A présent regardons J_{1s}^3

$$J_{1s}^3 = \int d\vec{r}_1 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{1s}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \psi_k^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s'}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.38})$$

et l'on voit apparaître explicitement le couplage entre deux fonctions d'onde de même symétrie s . Ce couplage est donc identiquement nul. Pour les mêmes raisons, la contribution de J_{1s}^4 se réduit à 0. Ainsi en vertu des deux expressions précédentes, nous pouvons écrire

$$J_{1s} = -i\mathcal{N} \frac{2^{13/2} (abZ_i^\oplus)^{3/2}}{\pi} k_z \exp\left(\frac{\pi\nu^\oplus}{2}\right) \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \times \left[\frac{2a - Z_k^\oplus}{[\alpha_1(Z_i^\oplus + b)]^3} \exp(-2\varphi_1\nu^\oplus) + \frac{2b - Z_k^\oplus}{[\alpha_2(Z_i^\oplus + a)]^3} \exp(-2\varphi_2\nu^\oplus) \right] \quad (\text{I.39})$$

Pour les raisons de symétrie d'échange J_{2p_0} peut s'écrire comme

$$J_{2p_0} = \frac{2\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \left[\psi_k^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) + \psi_k^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) \right] \times r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.40})$$

que l'on divise en deux intégrales

$$J_{2p_0} = \frac{2\lambda}{\sqrt{3}} [L_1 + L_2] \quad (\text{I.41})$$

Intéressons-nous tout d'abord à L_1

$$L_1 = \int d\vec{r}_1 \psi_k^{-\oplus*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.42})$$

Calculons tout d'abord l'intégrale sur \vec{r}_1 que nous pouvons directement ré-écrire à l'aide des définitions des fonctions d'onde

$$\int d\vec{r}_1 (\dots) = \mathcal{C}_{r_1} \left(i \frac{\partial}{\partial k_z} \right) \int d\vec{r}_1 \exp \left(-i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 - gr_1 \right) r_1 \cos \theta_1 \times {}_1F_1 \left(i\nu; 1; ikr_1 + i\vec{k} \cdot \vec{r}_1 \right) \quad (\text{I.43})$$

avec $\mathcal{C}_{r_1} = 2^{-4}(2g)^{5/2}\pi^{-2} \exp \left(\frac{\pi\nu}{2} \right) \Gamma(1-i\nu)$. A l'aide de (I.15) que l'on dérive par rapport à k_z , nous arrivons à

$$\int d\vec{r}_1 (\dots) = - \frac{(2g)^{5/2}(2g - Z_k^\oplus) \exp \left[\nu^\oplus \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_3 \right) \right]}{\pi \alpha_3^3} \Gamma(1-i\nu^\oplus) \left[\left(1 - \frac{6\sqrt{k}k_z^2}{\alpha_3} \right) (i\nu^\oplus - 1) - \frac{2\nu^\oplus k_z^2}{\sqrt{k}} \left(\frac{\beta}{1 + (\beta k)^2} - \frac{\varphi_3}{k} \right) \times (i\nu^\oplus - 1) - i \frac{\nu^\oplus k_z^2}{k^{3/2}} \right] \quad (\text{I.44})$$

où l'on a $\alpha_3 = g^2 + k^2$, $\beta = \frac{1}{g}$, et $\varphi_3 = \arctan \left(\frac{k}{g} \right)$. A présent, regardons l'intégrale sur \vec{r}_2 , sa contribution va être identiquement nulle à cause des harmoniques sphériques. Cet dernier point a pour effet de réduire la contribution de L_1 à 0. Intéressons-nous maintenant à L_2 qui peut s'écrire comme

$$L_2 = \int d\vec{r}_1 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) \int d\vec{r}_2 \psi_k^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) \quad (\text{I.45})$$

Nous avons déjà calculé le premier facteur intégral de L_2 qui s'écrit

$$\int d\vec{r}_1 \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) r_1 \cos \theta_1 \varphi_{2p_0}(\vec{r}_1) = \frac{32}{(Z_i^\oplus + g)^5} Z_i^{\oplus 3/2} g^{5/2} \quad (\text{I.46})$$

Puis le second

$$\int d\vec{r}_2 \psi_k^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{2p_0}(\vec{r}_2) = -i \frac{(2g)^{5/2}(2g - Z_k^\oplus) k_z}{\pi \alpha_3^3} \exp \left[\nu^\oplus \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_3 \right) \right] \Gamma(2 - i\nu^\oplus) \quad (\text{I.47})$$

En rassemblant les deux expressions précédentes, nous parvenons à une expression de L_2

$$L_2 = -i \frac{2^{15/2} g^5 Z_i^{\oplus 3/2} (2g - Z_k^{\oplus})}{\pi \alpha_3^3 (Z_i^{\oplus} + g)^5} k_z \exp \left[\nu^{\oplus} \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_3 \right) \right] \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \quad (\text{I.48})$$

d'où nous déduisons directement une formulation de J_{2p_0}

$$J_{2p_0} = -i \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \frac{2^{17/2} g^5 Z_i^{\oplus 3/2} (2g - Z_k^{\oplus})}{\pi \alpha_3^3 (Z_i^{\oplus} + g)^5} k_z \exp \left[\nu^{\oplus} \left(\frac{\pi}{2} - 2\varphi_3 \right) \right] \times \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \quad (\text{I.49})$$

En dernier lieu, regardons $J_{2p_{\pm}}$ qui s'écrit en tenant compte de la symétrie d'échange comme

$$J_{2p_{\pm}} = \frac{2\lambda}{\sqrt{3}} \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \left[\psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_1) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_2) + \psi_{\vec{k}}^{-\oplus*}(\vec{r}_2) \varphi_{1s}^{\oplus*}(\vec{r}_1) \right] \times r_1 \cos \theta_1 \left[\varphi_{2p_+}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_-}(\vec{r}_2) + \varphi_{2p_-}(\vec{r}_1) \varphi_{2p_+}(\vec{r}_2) \right] \quad (\text{I.50})$$

Nous pouvons remarquer que nous allons calculer des couplages et des recouvrements entre des fonctions d'onde de moments magnétiques différents. Ceci entraîne que chaque contribution va être nulle. Au final, la contribution de $J_{2p_{\pm}}$ est 0. Finalement, en vertu de (I.49) et (I.39) nous arrivons à la forme finale de M_2

$$M_2 = -i \frac{N_j}{(1 + \lambda^2)^{1/2}} \left\{ \mathcal{N} \frac{2^{13/2} (ab Z_i^{\oplus})^{3/2}}{\pi} k_z \exp \left(\frac{\pi \nu^{\oplus}}{2} \right) \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \times \left[\frac{2a - Z_k^{\oplus}}{[\alpha(Z_i^{\oplus} + b)]^3} \exp(-2\varphi \nu^{\oplus}) + \frac{2b - Z_k^{\oplus}}{[\alpha'(Z_i^{\oplus} + a)]^3} \exp(-2\varphi' \nu^{\oplus}) \right] + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \frac{2^{17/2} g^5 Z_i^{\oplus 3/2} (2g - Z_k^{\oplus})}{\pi \alpha^3 (Z_i^{\oplus} + g)^5} k_z \exp \left(\frac{\pi \nu^{\oplus}}{2} - 2\varphi \nu^{\oplus} \right) \Gamma(2 - i\nu^{\oplus}) \right\} \times \int_0^t dt' E(t') \exp[i(\varepsilon_{\vec{k}} + \varepsilon_{He^{\oplus}} - \varepsilon_{He})t'] \quad (\text{I.51})$$

Résumé : Nous présentons une approche théorique fondée sur des états de « Coulomb-Volkov » bien adaptée à l'étude des processus multiphotoniques atomiques induits par un laser XUV femtoseconde intense. Elle prédit les spectres d'ionisation de l'hydrogène quand l'impulsion incidente reste en conditions de perturbation. Trois voies sont explorées dans ce manuscrit. L'extension à des champs intenses quand $\hbar\omega > I_p$: il est nécessaire de prendre en compte la population de l'état initial de l'hydrogène, en l'introduisant dans une amplitude Coulomb-Volkov standard, on décrit l'ionisation multiphotonique quasi-saturée. L'extension aux transitions multiphotoniques avec $\hbar\omega < I_p$: de nouveaux chemins quantiques sont ouverts par l'excitation des états liés de l'hydrogène. Une approche Coulomb-Volkov de l'excitation multiphotonique de ces états est développée. L'extension à l'hélium : l'étude de la double ionisation directe à deux photons permet d'exhiber l'influence des corrélations électroniques dans l'état initial et dans l'état final. De nombreuses informations, comme les distributions angulaires et énergétiques mais aussi les sections efficaces sont accessibles.

Excitation and ionization of hydrogen and helium atoms by femtosecond laser pulses : theoretical approach by “Coulomb-Volkov” states

Abstract : We present a theoretical approach using “Coulomb-Volkov” states that appears useful for the study of atomic multiphotonic processes induced by intense XUV femtosecond laser pulses. It predicts hydrogen ionization spectra when it is irradiated by laser pulses in perturbations conditions. Three ways have been investigated. Extension to strong fields when $\hbar\omega > I_p$: it requires to include the hydrogen ground state population, introducing it in standard Coulomb-Volkov amplitude leads to saturated multiphotonic ionization. Extension to multiphotonic transitions with $\hbar\omega < I_p$: new quantum paths are open by the possibility to excite the lower hydrogen bound states. Multiphoton excitation of these states is investigated using a Coulomb-Volkov approach. Extension to helium : two-photon double ionization study shows the influence of electronic correlations in both ground and final state. Huge quantity of informations such as angular and energetic distributions as well as total cross sections are available.

MOTS-CLÉS :

Rayonnement XUV femtoseconde
Etats de Coulomb-Volkov
Transitions multiphotoniques
Double ionisation à deux photons

KEY-WORDS :

Femtosecond XUV light
Coulomb-Volkov states
Multiphotonic transitions
Two-photon double ionization